



**SKRIPSI**

**KOMPATIBILITAS  $\text{NiO-CeO}_2$  SEBAGAI PELAPIS  
PADA MEMBRAN KERAMIK**

**$\text{La}_{0,6}\text{Sr}_{0,4}\text{Co}_{0,2}\text{Fe}_{0,8}\text{O}_{3-\delta}$ ,**

**$\text{La}_{0,7}\text{Sr}_{0,3}\text{Co}_{0,2}\text{Fe}_{0,8}\text{O}_{3-\delta}$ , DAN  $\text{La}_{0,7}\text{Sr}_{0,3}\text{MnO}_{3\pm\delta}$   
SERTA SIFAT-SIFAT MEKANIKNYA**

LIA HARMELIA

NRP 01211340000110

Dosen Pembimbing

Hamzah Fansuri, Ph.D.

Wahyu Prasetyo Utomo, M.Si.

DEPARTEMEN KIMIA

Fakultas Ilmu Alam

Institut Teknologi Sepuluh Nopember

SURABAYA

2017



SCRIPT

**COMPATIBILITY OF NiO-CeO<sub>2</sub> AS A COATING  
ON La<sub>0.6</sub>Sr<sub>0.4</sub>Co<sub>0.2</sub>Fe<sub>0.8</sub>O<sub>3-δ</sub>,  
La<sub>0.7</sub>Sr<sub>0.3</sub>Co<sub>0.2</sub>Fe<sub>0.8</sub>O<sub>3-δ</sub>, AND La<sub>0.7</sub>Sr<sub>0.3</sub>MnO<sub>3±δ</sub>  
CERAMIC MEMBRANES WITH THEIR  
MECHANICAL PROPERTIES**

LIA HARMELIA  
NRP 01211340000110

Supervisors  
Hamzah Fansuri, Ph.D.  
Wahyu Prasetyo Utomo, M.Si.

DEPARTMENT OF CHEMISTRY  
Faculty of Science  
Institut Teknologi Sepuluh Nopember  
SURABAYA  
2017

**KOMPATIBILITAS NiO-CeO<sub>2</sub> SEBAGAI PELAPIS PADA  
MEMBRAN KERAMIK La<sub>0,6</sub>Sr<sub>0,4</sub>Co<sub>0,2</sub>Fe<sub>0,8</sub>O<sub>3-δ</sub>,  
La<sub>0,7</sub>Sr<sub>0,3</sub>Co<sub>0,2</sub>Fe<sub>0,8</sub>O<sub>3-δ</sub>, DAN La<sub>0,7</sub>Sr<sub>0,3</sub>MnO<sub>3±δ</sub> SERTA  
SIFAT-SIFAT MEKANIKNYA**

**SKRIPSI**

Disusun sebagai syarat untuk memperoleh gelar  
sarjana sains  
pada program studi S-1 Kimia  
Fakultas Ilmu Alam  
Institut Teknologi Sepuluh Nopember

Oleh:

**LIA HARMELIA**  
**NRP. 01211340000110**

**DEPARTEMEN KIMIA  
FAKULTAS ILMU ALAM  
INSTITUT TEKNOLOGI SEPULUH NOPEMBER  
SURABAYA  
2017**

## LEMBAR PENGESAHAN

# KOMPATIBILITAS $\text{NiO-CeO}_2$ SEBAGAI PELAPIS PADA MEMBRAN KERAMIK $\text{La}_{0,6}\text{Sr}_{0,4}\text{Co}_{0,2}\text{Fe}_{0,8}\text{O}_{3-\delta}$ , $\text{La}_{0,7}\text{Sr}_{0,3}\text{Co}_{0,2}\text{Fe}_{0,8}\text{O}_{3-\delta}$ , DAN $\text{La}_{0,7}\text{Sr}_{0,3}\text{MnO}_{3\pm\delta}$ SERTA SIFAT-SIFAT MEKANIKNYA

## SKRIPSI

Oleh:

**LIA HARMELIA**  
**NRP. 01211340000110**

Surabaya, 13 November 2017  
Menyetujui,

Dosen Pembimbing I



**Hamzah Fansuri, M.Si., Ph.D.**  
**NIP. 19691017 199412 1 001**

Dosen Pembimbing II



**Wahyu P. Utomo, S.Si., M.Si.**  
**NIP. 19890908 201504 1 001**

Mengetahui :

Kepala Departemen Kimia,



**Prof. Dr. Didik Prasetyoko, M.Sc**  
**NIP. 19710616 199703 1 002**

**KOMPATIBILITAS NiO-CeO<sub>2</sub> SEBAGAI PELAPIS PADA  
MEMBRAN KERAMIK La<sub>0,6</sub>Sr<sub>0,4</sub>Co<sub>0,2</sub>Fe<sub>0,8</sub>O<sub>3-δ</sub>,  
La<sub>0,7</sub>Sr<sub>0,3</sub>Co<sub>0,2</sub>Fe<sub>0,8</sub>O<sub>3-δ</sub>, DAN La<sub>0,7</sub>Sr<sub>0,3</sub>MnO<sub>3±δ</sub> SERTA  
SIFAT-SIFAT MEKANIKNYA**

**Nama** : Lia Harmelia  
**NRP** : 01211340000110  
**Departemen** : Kimia  
**Pembimbing 1** : Hamzah Fansuri, S.Si., M.Si., Ph.D  
**Pembimbing 2** : Wahyu Prasetyo Utomo, S.Si., M.Si.

**ABSTRAK**

Uji kompatibilitas antara membran datar perovskit La<sub>0,6</sub>Sr<sub>0,4</sub>Co<sub>0,2</sub>Fe<sub>0,8</sub>O<sub>3-δ</sub> (LSCF 6428), La<sub>0,7</sub>Sr<sub>0,3</sub>Co<sub>0,2</sub>Fe<sub>0,8</sub>O<sub>3-δ</sub> (LSCF 7328), dan La<sub>0,7</sub>Sr<sub>0,3</sub>Mn<sub>1,0</sub>O<sub>3±δ</sub> (LSM 7310) dengan lapisan campuran NiO-CeO<sub>2</sub> serta CeO<sub>2</sub> yang dibentuk menjadi membran lapis ganda dengan metode *dry pressing* telah dilakukan pada penelitian ini. Sebelumnya, dilakukan pembuatan dan karakterisasi membran tunggal LSCF 6428, LSCF 7328, LSM 7310 serta NiO-CeO<sub>2</sub> dan CeO<sub>2</sub>. Hasil karakterisasi menunjukkan bahwa LSM 7310 memiliki nilai kerapatan tertinggi kemudian diikuti oleh LSCF 7328 dan LSCF 6428, sedangkan membran NiO-CeO<sub>2</sub> dan CeO<sub>2</sub> belum rapat. Nilai kerapatan membran tersebut berhubungan dengan nilai kekerasan dan koefisien muai panas membran, yaitu semakin rapat membran maka semakin tinggi nilai kekerasan membran namun semakin rendah nilai koefisien muai panasnya. Nilai koefisien muai panas LSCF 6428, LSCF 7328, LSM 7310, NiO-CeO<sub>2</sub> dan CeO<sub>2</sub> secara berurutan sebesar 22,16; 9,31; 10,14; 12,21 dan 21,11 ppm/°C. Perbedaan nilai koefisien muai panas antara material material tersebut menyebabkan delaminasi pada lapisan antarmuka perovskit dan NiO-CeO<sub>2</sub> atau CeO<sub>2</sub> ketika membran lapis ganda dibentuk

**Kata kunci:** Membran lapis ganda, La<sub>1-x</sub>Sr<sub>x</sub>Co<sub>1-y</sub>Fe<sub>y</sub>O<sub>3-δ</sub>, La<sub>1-x</sub>Sr<sub>x</sub>MnO<sub>3-δ</sub>, NiO, CeO<sub>2</sub>, kompatibilitas, koefisien muai panas.

**COMPATIBILITY OF NiO-CeO<sub>2</sub> AS A COATING ON  
La<sub>0.6</sub>Sr<sub>0.4</sub>Co<sub>0.2</sub>Fe<sub>0.8</sub>O<sub>3-δ</sub>, La<sub>0.7</sub>Sr<sub>0.3</sub>Co<sub>0.2</sub>Fe<sub>0.8</sub>O<sub>3-δ</sub> AND  
La<sub>0.7</sub>Sr<sub>0.3</sub>MnO<sub>3±δ</sub> CERAMIC MEMBRANES WITH THEIR  
MECHANICAL PROPERTIES**

**Name** : Lia Harmelia  
**NRP** : 01211340000110  
**Department** : Chemistry  
**Supervisor 1** : Hamzah Fansuri, S.Si., M.Si., Ph.D  
**Supervisor 2** : Wahyu Prasetyo Utomo, S.Si., M.Si.

**ABSTRACT**

The compatibility test between La<sub>0.6</sub>Sr<sub>0.4</sub>Co<sub>0.2</sub>Fe<sub>0.8</sub>O<sub>3-δ</sub> (LSCF 6428), La<sub>0.7</sub>Sr<sub>0.3</sub>Co<sub>0.2</sub>Fe<sub>0.8</sub>O<sub>3-δ</sub> (LSCF 7328), La<sub>0.7</sub>Sr<sub>0.3</sub>MnO<sub>3±δ</sub> (LSM 7310)-based flat membrane with a mixed coating layer of NiO-CeO<sub>2</sub> and CeO<sub>2</sub> which formed into a double layers membrane has been done in this research. Perovskite oxides were synthesized by solid state method. Previously, single layer membranes of LSCF 6428, LSCF 7328, LSM 73 NiO-CeO<sub>2</sub> and CeO<sub>2</sub> were fabricated and characterized. The result showed that LSM 7310 has the highest density then followed by LSCF 7328 and LSCF 6428, whereas NiO-CeO<sub>2</sub> and CeO<sub>2</sub> membranes showed that the densification is not completed. Those density membrane values were corresponded to its hardness and thermal expansion coefficient values, where the denser the membrane is, the higher the membrane hardness value but the thermal expansion coefficient value is lower. The thermal expansion coefficient values of LSCF 6428, LSCF 7328, LSM 7310, NiO-CeO<sub>2</sub> and CeO<sub>2</sub> were 22.16; 9.31; 10.14; 12.21 and 21.11 ppm/°C respectively. The thermal expansion coefficient difference between those materials caused delamination on perovskite and NiO-CeO<sub>2</sub> or CeO<sub>2</sub> interface layer when the double layer membranes were formed

**Keywords:** Double layer membrane, La<sub>1-x</sub>Sr<sub>x</sub>Co<sub>1-y</sub>Fe<sub>y</sub>O<sub>3-δ</sub>, La<sub>1-x</sub>Sr<sub>x</sub>MnO<sub>3-δ</sub>, NiO, CeO<sub>2</sub>, compatibility, thermal expansion coefficient.

## KATA PENGANTAR

Puji syukur penulis panjatkan ke hadirat Allah SWT karena atas rahmat, taufik dan hidayahnya sehingga tugas akhir berjudul: kompatibilitas  $\text{NiO-CeO}_2$  sebagai pelapis pada membran keramik perovskit  $\text{La}_{0,6}\text{Sr}_{0,4}\text{Co}_{0,2}\text{Fe}_{0,8}\text{O}_{3-\delta}$ ,  $\text{La}_{0,7}\text{Sr}_{0,3}\text{Co}_{0,2}\text{Fe}_{0,8}\text{O}_{3-\delta}$ , dan  $\text{La}_{0,7}\text{Sr}_{0,3}\text{Mn}_{0,3}\text{O}_{3-\delta}$  serta sifat mekaniknya ini dapat diselesaikan dengan baik. Tulisan ini tidak dapat terwujud tanpa bantuan, dukungan dan dorongan dari semua pihak. Untuk ini, penulis sangat berterima kasih kepada:

1. Hamzah Fansuri, S.Si, M.Si, Ph.D Wahyu Prasetyo Utomo, S.Si, M.Si selaku dosen pembimbing yang telah memberikan pengarahan bimbingan dan motivasi selama penyusunan tugas akhir ini.
2. Prof. Dr. Drs. Taslim Ersam, M.S selaku dosen wali yang telah memberikan pengarahan dan bimbingan dalam pengambilan mata kuliah.
3. Prof. Dr. Didik Prasetyoko selaku Kepala Departemen Kimia yang telah memberikan fasilitas selama penyusunan tugas akhir ini.
4. Dr. Djoko Hartanto, M.Si selaku Kepala Laboratorium Kimia Material dan Energi
5. Dra. Ratna Edianti, M.S., Ph.D dan Drs. Djarot Sugiarto, K.S., M.Si selaku kepala dan sekretaris prodi S1 yang telah memfasilitasi dan memberi dorongan selama penyusunan tugas akhir.
6. Bapak Sudharnoto dan Ibu Harlia selaku orang tua penulis yang selalu memberi dukungan dan doa
7. Teman-teman kelompok penelitian material penyimpan energi yang selalu memberi bimbingan dan saran.
8. Zulfah, Ova, Silmi, Ranny, dan Ismi selaku sahabat penulis yang selalu memberikan dukungan, kritik dan saran.
9. Teman-teman Anorthite, serta para senior yang memberikan semangat dan dukungan selama penyelesaian tugas akhir ini

10. Serta semua pihak yang telah membantu dalam penulisan tugas akhir ini.

Penulis menyadari sepenuhnya bahwa tugas akhir ini tidak lepas dari kekurangan. Oleh karena itu, penulis mengharapkan saran dan kritik yang membangun untuk dapat meningkatkan kualitas dan perbaikan lebih lanjut. Semoga tugas akhir ini memberikan manfaat bagi penulis dan pembaca. Amin.

Surabaya, 13 November 2017

Penulis



## DAFTAR ISI

HALAMAN JUDUL .....	i
LEMBAR PENGESAHAN.....	iv
ABSTRAK .....	v
KATA PENGANTAR.....	vii
DAFTAR ISI .....	ix
DAFTAR GAMBAR.....	xii
DAFTAR TABEL .....	xvi
BAB I PENDAHULUAN .....	1
1.1. Latar belakang .....	1
1.2 Perumusan Masalah.....	3
1.3 Tujuan Penelitian.....	4
1.4. Batasan Masalah.....	4
1.5. Manfaat Penelitian.....	4
BAB II TINJAUAN PUSTAKA DAN DASAR TEORI .....	5
2.1 Membran Penghantar Campuran Ionik dan Elektronik (Mixed Ionic-Electronic Conductor/ MIEC) .....	5
2.2 Oksida Perovskit .....	7
2.3 Sifat-sifat $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{Co}_{1-y}\text{Fe}_y\text{O}_{3-\delta}$ sebagai Penghantar Ion Oksigen.....	12
2.4 Sifat-sifat $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_{3-\delta}$ sebagai Penghantar Ion Oksigen .....	13
2.5 Sintesis Oksida Perovskit dan Membran Datar .....	15
2.5.1 Sintesis Oksida Perovskit dengan Metode Solid state.. .....	15
2.5.2 Pembuatan Membran Datar.....	17

2.6 Nikel (II) Oksida (NiO).....	18
2.7 Cerium (IV) Oksida (CeO <sub>2</sub> ) .....	19
2.8 Karakterisasi Oksida Perovskit.....	21
2.8.1 Analisis Difraksi Sinar-X (XRD).....	21
2.9 Analisis dan Uji Sifat Mekanik Membran Keramik .....	24
2.9.1 Thermomechanical Analysis (TMA) .....	24
2.9.2 Uji Kekerasan Vicker.....	28
2.9.3 Scanning Electron Microscope-Energy Dispersive X-Ray (SEM-EDX) .....	30
BAB III METODOLOGI PENELITIAN .....	37
3.1 Alat dan Bahan .....	37
3.1.1 Alat.....	37
3.1.2 Bahan .....	37
3.2 Metode Penelitian.....	37
3.2.1 Sintesis Oksida Perovskit.....	37
3.2.2 Pembuatan Membran Keramik Datar .....	40
3.2.3 Uji Membran Keramik .....	43
BAB IV HASIL DAN PEMBAHASAN.....	45
4.1 LSCF 6428, LSCF 7328, LSM 7310 dan campuran NiO-CeO <sub>2</sub> .....	45
4.2 Pembuatan Membran.....	51
4.2.1 Membran Lapis Tunggal Oksida Perovskit, CeO <sub>2</sub> dan Campuran NiO-CeO <sub>2</sub> . .....	51
4.2.2 Membran Lapis Ganda CeO <sub>2</sub> /perovskit dan NiO-CeO <sub>2</sub> /perovskit.....	57

4.2.3 Membran Lapis Ganda Perovskit- NiO-CeO <sub>2</sub> /Perovksit dan Perovskit-CeO <sub>2</sub> /Perovksit...	62
4.2.4 Membran Lapis Ganda NiO-CeO <sub>2</sub> /Perovksit dan CeO <sub>2</sub> /Perovksit dengan Penambahan Agen Perekat ...	66
BAB V KESIMPULAN DAN SARAN .....	73
5.1 Kesimpulan.....	73
5.2 Saran.....	73
DAFTAR PUSTAKA.....	75
LAMPIRAN .....	85
BIODATA PENULIS.....	113

## DAFTAR GAMBAR

Gambar 2.1	Proses transfer oksigen pada membran MIEC (Sunarso dkk., 2008).....	6
Gambar 2.2	Struktur perovskit $\text{ABO}_3$ , (a) penggunaan sudut oktahedral ( $\text{BO}_6$ ) dengan ion yang terletak dalam 12 koordinasi, (b) kation situs B pada pusat sel (Zhang dkk., 2011).....	8
Gambar 2.3	Distorsi struktur kristal perovskit (a) Orthorombik (b) Heksagonal (Johnsson dkk., 2007).....	9
Gambar 2.4	Skema terbentuknya kekosongan oksigen kisi (Mundschau dkk., 2008).....	10
Gambar 2.5	Kekosongan oksigen permukaan (a) permukaan perovskit ideal (1 0 0) dan (b) (1 1 1) (Mundschau dkk., 2008).....	11
Gambar 2.6	Konduktivitas elektronik $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ ( $0 \leq x \leq 0,7$ ) (Jiang, 2008).....	14
Gambar 2.7	Skema Pembentukan Membran Rapat BSCF 5582 Terlapisi BSCF 5528 (Chen dkk., 2007).....	18
Gambar 2.8	Mekanisme Pembentukan Syngas dari Reaksi Oksida Parsial Metana dengan $\text{CeO}_2$ (Otsuka dkk., 1998).....	21
Gambar 2.9	Difraktogram perovskit $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{Co}_{0,2}\text{Fe}_{0,8}\text{O}_{3-\delta}$ ( $0,3 \leq x \leq 0,8$ ) (Möbius dkk., 2009).....	22
Gambar 2.10	Difraktogram sinar-X $\text{LaMnO}_3$ setelah disinter pada suhu $1000^\circ\text{C}$ (Xu dkk., 2013)..	23
Gambar 2.11	Difraktogram sinar X $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ dengan variasi kandungan Sr (Xu dkk., 2013).....	24
Gambar 2.12	Skema alat analisis termomekanik (Haines, 2002).....	25
Gambar 2.13	Jenis-jenis probe TMA (kiri-kanan); kompresi, penetrasi, tensi, volumetrik (Haines, 2002).....	26

Gambar 2.14	Sifat muai panas LSCF yang disintesis dengan metode berbeda (Nityanand dkk., 2011).....	28
Gambar 2.15	Indentor kekerasan Vicker berbentuk piramida (Calliester, 2010).....	29
Gambar 2.16	Posisi titik-titik indentasi di permukaan membran LCCF (Fansuri dkk., 2012).....	30
Gambar 2.17	Skema alat <i>Scanning Electron Microscope</i> (SEM) (Nugroho, 2014).....	31
Gambar 2.18	Beberapa interaksi antara elektron berenergi tinggi dan atom. (a) Hamburan sudut rendah (b) Elektron Hamburan balik (atau sudut tinggi); (C) Emisi elektron sekunder dan karakteristik sinar X; (D) Emisi elektron sekunder dan elektron Auger (Vernon-Parry, 2000).....	32
Gambar 2.19	Skema dasar pelepasan berkas elektrosn melintasi sampel dan sinyal yang dipancarkan dan dipindahkan sebagai fungsi posisi gambar atau monitor (Suga dkk., 2014).....	33
Gambar 2.20	Volume interaksi sampel dengan berkas elektron dan daerah asal elektron dan sinar-X yang terdispersi dapat dipancarkan (Vernon-Parry, 2000).....	34
Gambar 2.21	Morfologi dan pemetaan unsur EDX pada gambar SEM di area antarmuka lapisan BSCN dan LSCF (Han dkk., 2014).....	36
Gambar 3.1	Program suhu kalsinasi.....	39
Gambar 3.2	Program suhu sintering.....	39
Gambar 3.3	Titik-titik indentasi uji kekerasan membran..	44
Gambar 4.1	Campuran hasil penggerusan dengan <i>planetary ball mill</i> : (a) LSCF dan (b) LSM...	46
Gambar 4.2	Campuran (a) LSCF dan (b) LSM yang telah diuapkan.....	47

Gambar 4.3	Perubahan warna serbuk campuran LSCF: (a) sebelum dan (b) sesudah kalsinasi-sintering.....	48
Gambar 4.4	Perubahan warna serbuk campuran LSM 7310 (a) sebelum dan (b) sesudah kalsinasi-sintering.....	48
Gambar 4.5	Difraktogram LSCF 6428, LSCF 7328, dan LSM 7310 hasil sintesis, serta LSCF 7337 standar.....	49
Gambar 4.6	Difraktogram NiO, CeO <sub>2</sub> , dan campuran NiO-CeO <sub>2</sub> .....	50
Gambar 4.7	Membran mentah lapis tunggal sebelum disinter: (a) LSCF 7328, (b) LSM 7310, (c) LSCF 6428, (d) CeO <sub>2</sub> dan (e) NiO-CeO <sub>2</sub> .....	52
Gambar 4.8	Membran lapis tunggal setelah disinter (a) LSCF 7328, (b) LSM 7310, (c) LSCF 6428, (d) CeO <sub>2</sub> dan (e) NiO-CeO <sub>2</sub> .....	53
Gambar 4.9	Uji Tetes air pada permukaan membran perovskit: (a) LSCF 7328, (b) LSCF 6428 dan (c) LSM 7310.....	54
Gambar 4.10	Mikrograf membran: (a) LSM 7310, (b) LSCF 7328, (c) LSCF 6428, (d), CeO <sub>2</sub> dan (e) NiO-CeO <sub>2</sub> .....	55
Gambar 4.11	Membran lapis ganda: (a) oksida perovskit/ NiO dan (b) oksida perovskit/CeO <sub>2</sub> .....	58
Gambar 4.12	Kurva muai panas membran perovskit dan CeO <sub>2</sub> .....	59
Gambar 4.13	Kurva muai panas membran perovskit dan NiO-CeO <sub>2</sub> .....	59
Gambar 4.14	Membran lapis ganda sebelum (atas) dan sesudah (bawah) sintering (a) LSCF 6428-CeO <sub>2</sub> / LSCF 6428 (b) LSCF 6428-NiO-CeO <sub>2</sub> / LSCF 6428 (c) LSCF 7328-CeO <sub>2</sub> / LSCF 7328 (d) LSCF 7328-NiO-CeO <sub>2</sub> / LSCF 7328 (e) LSM 7310-	63

	CeO <sub>2</sub> / LSM 7310 (f) LSM 7310-NiO-CeO <sub>2</sub> / LSM 7310.....	
Gambar 4.15	Hasil mapping SEM EDX pada membran (a)LSCF 6428-CeO <sub>2</sub> /LSCF 6428; (b) LSCF 7328-CeO <sub>2</sub> /LSCF 7328; (c) LSM 7310-CeO <sub>2</sub> /LSM 7310.....	64
Gambar 4.16	Hasil <i>mapping</i> SEM-EDX pada membran (a) LSCF 6428-NiO-CeO <sub>2</sub> /LSCF 6428; (b) LSCF 7328-NiO-CeO <sub>2</sub> /LSCF 7328; (c) LSM 7310-NiO-CeO <sub>2</sub> /LSM 7310.....	65
Gambar 4.17	Hasil membran perovskit terlapisi NiO-CeO <sub>2</sub> dan CeO <sub>2</sub> dengan agen perekat amilum (a) NiO-CeO <sub>2</sub> /LSCF 6428 (b) NiO-CeO <sub>2</sub> /LSCF 6428 (c) NiO-CeO <sub>2</sub> /LSCF 6428 (d) CeO <sub>2</sub> /LSCF 6428 (e) CeO <sub>2</sub> /LSCF 6428 (f) CeO <sub>2</sub> /LSCF 6428.....	67
Gambar 4.18	Analisis difraksi sinar-X membran NiO/LSCF 6428.....	68
Gambar 4.19	Hasil mapping SEM-EDX pada membran (a) CeO <sub>2</sub> /LSCF 6428 (b) CeO <sub>2</sub> /LSCF 7328 (c) CeO <sub>2</sub> /LSM 7310. Sebaran unsur-unsur Ce ditandai dengan kotak merah.....	69
Gambar 4.20	Hasil mapping SEM-EDX pada membran (a) NiO-CeO <sub>2</sub> /LSCF 6428 (b) NiO-CeO <sub>2</sub> /LSCF 7328 (c) NiO-CeO <sub>2</sub> / LSM 7310. Sebaran unsur-unsur Ce ditandai dengan kotak merah.....	70

## DAFTAR TABEL

Tabel 2.1	Rata-rata Nilai koefisien muai panas LSCF 6428 dalam rentang yang berbeda-beda (Nityanand dkk., 2011).....	27
Tabel 2.2	Kekerasan membran LCCF (Fansuri dkk., 2012).....	30
Tabel 3.1	Jumlah masa reaktan dalam sintesis 25 g oksida perovskit LSCF 7328, LSCF 6428, dan LSM 7310.....	38
Tabel 4.1	Data ukuran membran sebelum dan setelah sintering.....	53
Tabel 4.2	Kekerasan membran perovskit pada 5 titik yang berbeda.....	56
Tabel 4.3	Nilai Koefisien Muai Panas Membran perovskit, CeO <sub>2</sub> dan NiO-CeO <sub>2</sub> .....	61



# BAB I

## PENDAHULUAN

### 1.1. Latar belakang

Reaksi katalitik oksidasi parsial metana sangat menjanjikan dalam proses konversi metana karena reaksi terjadi secara eksotermal dan produk CO dan H<sub>2</sub> yang dihasilkan memiliki rasio molar sebesar 2:1. Secara stoikiometri rasio tersebut sangat sesuai untuk reaksi Fischer-Tropsch (Ruckenstein dkk., 1999). Namun, produk-produk oksidasi sempurna seperti CO<sub>2</sub> dan H<sub>2</sub>O yang tidak diharapkan juga dapat dihasilkan dalam reaksi oksidasi parsial metana apabila konsentrasi oksigen yang diumpankan berlebih (Fansuri dkk., 2016).

Kontrol oksigen yang ketat sangat diperlukan dalam reaksi oksidasi parsial metana agar tidak terjadi oksidasi sempurna. Kontrol tersebut dapat dilakukan dengan membran penghantar ion oksigen. Contoh membran penghantar ion oksigen adalah membran keramik berbahan dasar material penghantar elektron sekaligus ion (*Mixed Ionic and Electronic Conductor*/MIEC) seperti membran berbahan oksida perovskit yang telah diketahui memiliki kemampuan hantaran ion oksigen yang tinggi (Teraoka dkk., 1991).

Oksida perovskit La<sub>1-x</sub>Sr<sub>x</sub>Co<sub>1-y</sub>Fe<sub>y</sub>O<sub>3</sub> (LSCF) merupakan salah satu bahan membran MIEC yang berpotensi sebagai membran penghantar oksigen karena memiliki konduktivitas ion dan elektron serta fluks permeasi oksigen yang tinggi (Tai dkk., 1995; Asadi dkk., 2012). Membran LSCF memiliki stabilitas yang lebih baik dibandingkan dengan membran oksida perovskit berbasis strontium dan kobalt lainnya seperti Sr<sub>x</sub>Co<sub>1-y</sub>Fe<sub>y</sub>O<sub>3-δ</sub> (SCF) dan Ba<sub>1-x</sub>Sr<sub>x</sub>Co<sub>y</sub>Fe<sub>1-y</sub>O<sub>3-δ</sub> (BSCF) karena lebih resisten terhadap CO<sub>2</sub>. Pembentukan senyawa karbonat pada LSCF akibat reaksi dengan CO<sub>2</sub> saat reaksi oksidasi parsial metana berlangsung lebih sulit terjadi (Tan dkk., 2012). Terbentuknya senyawa karbonat di permukaan membran menurunkan kemampuan membran dalam menghantar ion oksigen. LSCF yang memiliki stabilitas baik pada

lingkungan yang mereduksi dan terpapar oleh gas-gas  $\text{CO}_2$ ,  $\text{H}_2\text{O}$  dan  $\text{SO}_x$  adalah yang memiliki komposisi 20% Co dan 80% Fe pada situs B (Schulze-Küppers dkk., 2014).

Material perovskit yang juga memiliki stabilitas yang tinggi adalah oksida perovskit  $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_{3-\delta}$  (LSM). Biasanya, LSM banyak digunakan sebagai katoda untuk *Solid Oxide Fuel Cell* (SOFC) karena stabilitasnya yang tinggi (mampu bertahan lama saat dioperasikan pada suhu 1000 °C) dan konduktivitas elektronik yang tinggi. Sebaliknya, konduktivitas ionik LSM lebih rendah dibandingkan oksida perovskit (Zhu dkk., 2008). Walaupun memiliki konduktivitas ion oksigen rendah, LSM dengan tingkat substitusi Sr rendah adalah katalis yang sesuai dalam reaksi oksidasi parsial metana dengan selektivitas CO sekitar 75%. (Wei dkk., 2008).

Umumnya,  $\text{La}_{1-x}(\text{Ba}, \text{Sr}, \text{Ca})_x\text{Co}_{1-y}(\text{Mn}, \text{Fe}, \text{Ni})_y\text{O}_{3-\delta}$  ( $0 \leq x, y \leq 1$ ) dapat mengalami dekomposisi fasa pada lingkungan pereduksi (kondisi konversi *syngas*) dalam jangka waktu yang panjang. Akibatnya, aktivitas katalis kelompok oksida perovskit tersebut dalam reaksi katalitik oksidasi parsial metana juga akan menurun (Zhu dkk., 2008). Kendala tersebut dapat diatasi dengan modifikasi membran perovskit. Menurut Cheng dkk. (2011), kinerja membran perovskit (meliputi fluks permeasi oksigen, stabilitas dan sifat katalitiknya) dapat ditingkatkan dengan cara melapiskan material yang berperan aktif sebagai katalis dalam reaksi oksidasi parsial metana.

Ada tiga jenis katalis untuk reaksi oksidasi parsial metana (OPM) yaitu: (i) logam-logam tidak mulia golongan VIII seperti Ni, Co dan Fe; (ii) logam-logam mulia golongan VIII seperti Ru, Rh, Pd, Pt dan Ir serta (iii) katalis karbida logam transisi. Katalis berbasis logam mulia telah terbukti efektif dalam reaksi OPM dan memiliki resistensi tinggi terhadap pembentukan endapan karbon (cokes) (Choque dkk., 2010). Namun, penggunaan katalis logam mulia terbatas oleh harga yang tinggi dan keberadaannya yang jarang ditemukan. Sementara itu, katalis berbasis Ni menunjukkan aktivitas yang setara dengan katalis berbasis logam mulia dan lebih

menarik perhatian karena harganya yang lebih terjangkau. Selain itu, penambahan katalis berbasis nikel juga dapat meningkatkan fluks permeasi oksigen. Peningkatan fluks tersebut disebabkan oleh aktivitas katalis berbasis nikel yang membuat permukaan membran yang dilapisi nikel mempunyai tekanan parsial oksigen yang lebih rendah daripada sisi membran yang tidak dilapisi oleh katalis nikel (Rodulfo-Baechler, 2016). Walau demikian, pembentukan endapan karbon dalam reaksi oksidasi parsial metana terkatalisis nikel mudah terjadi (Asencious dkk., 2012). Beberapa peneliti (Bulfin dkk., 2013 dan York dkk., 2003) melaporkan bahwa penambahan oksida logam tanah jarang seperti  $\text{CeO}_2$ , dapat mengurangi proses pembentukan endapan karbon tersebut. Oksigen yang dimiliki oleh  $\text{CeO}_2$  dapat membantu proses oksidasi endapan karbon tersebut.

Berdasarkan uraian tersebut maka masalah pengendapan karbon dan fluks permeasi oksigen pada membran berbasis oksida perovskit LSCF dan LSM diperkirakan dapat diatasi. Kinerja membran penghantar ion oksigen berbasis LSCF dan LSM dapat ditingkatkan dengan membuatnya menjadi membran berlapis ganda. Lapisan pertama adalah oksida perovskit LSCF atau LSM dan lapisan kedua adalah campuran oksida nikel ( $\text{NiO}$ ) dan ceria ( $\text{CeO}_2$ ). Walau demikian, pelapisan membran LSCF dan LSM dengan  $\text{NiO-CeO}_2$  diharapkan tidak menyebabkan terbentuknya fasa baru, baik pada lapisan LSCF dan LSM maupun  $\text{NiO-CeO}_2$  akibat dari reaksi yang terjadi antar unsur-unsur penyusun masing-masing lapisan.

## 1.2 Perumusan Masalah

Pelapisan campuran oksida  $\text{NiO-CeO}_2$  pada membran LSCF dan LSM dapat menjadi masalah yang besar apabila lapisan katalis tidak cocok (*compatible*) dengan lapisan oksida perovskitnya. Ketidakcocokan tersebut terutama disebabkan oleh perbedaan pemuai panas antara campuran  $\text{NiO-CeO}_2$  dan oksida perovskit. Akibat ketidakcocokan tersebut, lapisan katalis  $\text{NiO-CeO}_2$  dapat terkelupas (*delaminated*) saat digunakan pada kondisi reaksi yang

membutuhkan suhu tinggi (antara 700 sampai 1000 °C). Oleh karena itu, diperlukan informasi tentang karakteristik pemuatan panas masing-masing komponen (LSCF, LSM, NiO dan CeO<sub>2</sub>) serta metode pelapisannya.

Informasi tentang nilai koefisien muai panas pada rentang suhu reaksi OPM diperlukan untuk mengetahui kecocokan antara lapisan NiO-CeO<sub>2</sub> dengan lapis membran oksida perovskit LSCF dan LSM.

### 1.3 Tujuan Penelitian

Berdasarkan uraian di atas, tujuan dari penelitian ini adalah untuk mengetahui kompatibilitas NiO-CeO<sub>2</sub> sebagai katalis yang dilekatkan sebagai pelapis pada membran keramik LSCF dan LSM. Kompatibilitas ini dikaji melalui koefisien muai panas serta sebaran partikel-partikel antara lapisan perovskit dan lapisan campuran NiO-CeO<sub>2</sub>.

### 1.4. Batasan Masalah

Pada penelitian ini, oksida perovskit yang digunakan sebagai membran adalah LSCF 6428 (La<sub>0,6</sub>Sr<sub>0,4</sub>Co<sub>0,2</sub>Fe<sub>0,8</sub>O<sub>3-δ</sub>), LSCF 7328 (La<sub>0,7</sub>Sr<sub>0,3</sub>Co<sub>0,2</sub>Fe<sub>0,8</sub>O<sub>3-δ</sub>) dan LSM 7310 (La<sub>0,7</sub>Sr<sub>0,3</sub>MnO<sub>3±δ</sub>).

### 1.5. Manfaat Penelitian

Penelitian ini menghasilkan informasi utama yang berkaitan dengan sifat fisik, berupa nilai koefisien muai panas dan kekerasan, membran keramik lapis ganda LSCF 6428, 7328 dan LSM 7310 terlapis campuran NiO-CeO<sub>2</sub> yang dipreparasi dengan metode *dry pressing*. Hasil penelitian ini dapat dimanfaatkan dalam pengembangan katalis membran dalam aplikasi konversi metana menjadi syn gas maupun hidrokarbon melalui reaksi oksidasi parsial.

## **BAB II**

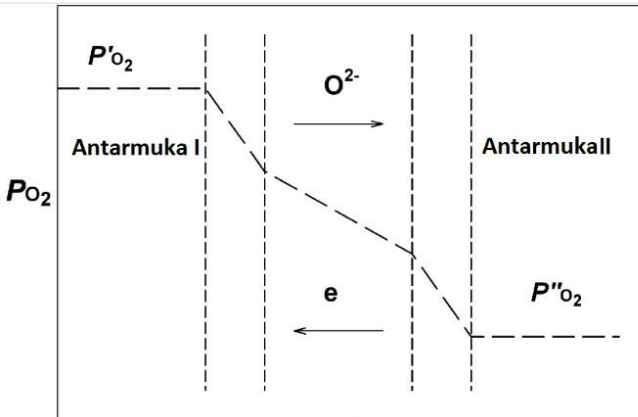
### **TINJAUAN PUSTAKA DAN DASAR TEORI**

#### **2.1 Membran Penghantar Campuran Ionik dan Elektronik (*Mixed Ionic-Electronic Conductor/ MIEC*)**

Membran keramik rapat dengan materi penghantar campuran ionik dan elektronik (*mixed ionic-electronic conductors/MIEC*) merupakan material yang berpotensi sebagai membran pemisahan oksigen murni dari udara atau gas campuran yang mengandung oksigen pada suhu tinggi. Transfer oksigen melalui membran keramik rapat MIEC hanya dapat terjadi melalui lompatan ion-ion oksigen yang teraktivasi termal dan berpindah ke situs kosong terdekat dalam kisi kristal membran penghantar campuran (Kharton dkk., 1999).

Permeasi oksigen dalam bentuk ion dapat terjadi karena adanya gaya dorong berupa perbedaan potensial listrik dan potensial kimia (seperti tekanan parsial oksigen). Proses transfer oksigen pada membran penghantar campuran terjadi melalui tiga tahap, seperti yang terlihat pada Gambar 2.1, yaitu reaksi pertukaran pada antarmuka I, difusi spesi bermuatan pada fasa ruah (*bulky*), dan reaksi pertukaran pada antarmuka II. Pada antarmuka I terjadi di sisi tekanan parsial oksigen tinggi ( $PO_2$ ), molekul oksigen dalam bentuk gas mengalami proses disosiasi dan terikat pada situs kosong ion oksida. Selanjutnya, ion oksida (atau kekosongan ion oksida) dan muatan elektronik bermigrasi sepanjang penghantar campuran. Secara bersamaan, fluks elektron mengalir secara bersamaan dengan fluks oksigen dari arah yang berlawanan untuk mengimbangi muatan fluks oksigen. Tahap reaksi permukaan antarmuka II terjadi pada sisi tekanan parsial oksigen rendah ( $PO_2$ ), ion oksida terpisah dengan muatan elektronik untuk membentuk molekul oksigen yang akan dilepaskan pada aliran permeat (Teraoka dkk., 1991). Fluks permeasi oksigen yang melalui membran MIEC dikontrol oleh dua faktor penting, yakni (i) laju difusi kekosongan oksigen di dalam membran dan (ii)

pertukaran oksigen antarmuka yang terjadi pada kedua sisi membran.



Gambar 2.1 Proses transfer oksigen pada membran MIEC (Sunarso dkk., 2008).

Di antara banyak struktur penghantar campuran ionik dan elektronik yang tersedia, sebagian besar penelitian pada bidang ini terfokus pada oksida perovskit. Oksida perovskit berbasis lantanum kobaltit ( $LaCoO_3$ ) merupakan salah satu material yang memiliki kemampuan permeasi oksigen dan sifat konduktivitas campuran yang tinggi. Kemampuan  $LaCoO_3$  tersebut dapat ditingkatkan dengan substitusi parsial kation logam menjadi perovskit dengan komposisi  $La_{1-x}A_xCo_{1-y}B_yO_{3-\delta}$  ( $A = Sr$  dan  $Ba$ ;  $B = Fe, Cr, Mn, Ga$ ). Komposisi tersebut pertama kali diteliti oleh Teraoka dkk. (1991) (Bouwmeester, 2003).

Selain itu, oksida perovskit yang berasal dari lantanum manganit ( $LaMnO_{3\pm\delta}$ ) dengan substitusi logam alkali tanah dan logam transisi pada  $La$  dan  $Mn$  juga merupakan material yang berpotensi sebagai membran MIEC karena sifat-sifat yang dimilikinya seperti titik lebur yang tinggi, konduktivitas ion oksida dan elektronik yang besar serta stabilitas mekanik dan kimia pada lingkungan tereduksi dan teroksidasi (Zuev dkk., 2010).

## 2.2 Oksida Perovskit

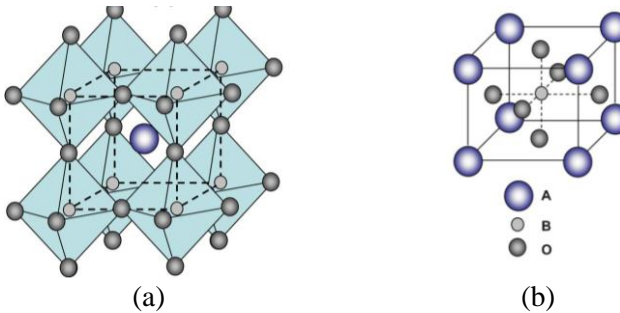
Perovskit memiliki rumus struktur kristal ideal  $\text{ABO}_3$  dengan kation A terdiri dari ion alkali tanah, alkali dan lantanida dengan koordinasi 12, sedangkan kation B adalah ion logam transisi dengan koordinasi 6 (Zhang dkk., 2011). Awalnya, nama perovskit berasal dari mineral  $\text{CaTiO}_3$  yang ditemukan di Pegunungan Ural oleh Gustav Rose pada tahun 1839. Nama perovskit berasal dari nama ahli geolog yang bernama Count Lev Aleksevich Con Perovski (Lufaso, 2002).

Perovskit terdiri dari kation A dan B dengan muatan total +6 yang diimbangi dengan muatan -6 dari anion oksigen. Kation A, umumnya, memiliki ukuran yang lebih besar ( $1,10 - 1,80 \text{ \AA}$ ), sementara kation B memiliki ukuran yang lebih kecil daripada kation A ( $0,62 - 1,00 \text{ \AA}$ ), dimana kation A dikelilingi oleh 12 anion oksigen dan kation B oleh 6 anion oksigen (Sunarso dkk., 2017)

Secara ideal, struktur kristal perovskit  $\text{ABO}_3$  berbentuk kubus, seperti pada Gambar 2.2. Struktur kristal tersebut disusun dari jaringan oktahedral  $\text{BO}_6$  yang bersama-sama menempati sudut-sudut kubus dengan ion A yang terletak dalam rongga koordinasi 12. Kemungkinan lain, struktur ideal dapat terlihat dengan kation B terletak pada pusat dengan ion-ion oksigen yang berkoordinasi dengan dua ion B dan empat ion A, terlihat pada Gambar 2.2 (b). Hal itu menunjukkan bahwa adanya sub kisi kerangka  $\text{BO}_3$  yang stabil menjadi prasyarat penting untuk terbentuknya struktur perovskit yang stabil. Sub kisi kerangka  $\text{BO}_3$  dapat lebih stabil dengan menempatkan kation A pada pusat delapan oktahedral  $\text{BO}_6$ . Umumnya, adanya kation A dapat mengakibatkan terjadinya distorsi pada sub kisi kerangka  $\text{BO}_3$  saat panjang ikatan kation logam-ion oksigen optimal berusaha dicapai. Distorsi yang sangat besar mengakibatkan terbentuknya geometri kristal bukan kubus, seperti orthorombik atau rombohedral, terlihat pada Gambar 2.3 (a) dan (b), secara berurutan. Hubungan antara batas toleransi dan ukuran ion didefinisikan sebagai toleransi Goldschmidt (t) yang

dapat digunakan untuk memperkirakan tingkat distorsi yang terlihat pada Persamaan 2.1

$$t = \frac{(r_A + r_O)}{\sqrt{2}(r_B + r_O)} \quad (2.1)$$

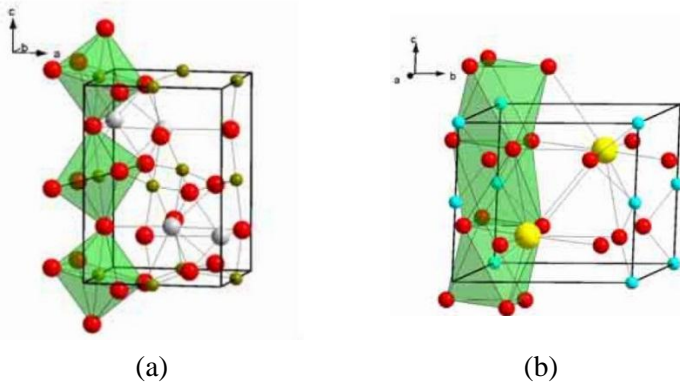


Gambar 2.2 Struktur perovskit  $ABO_3$ , (a) penggunaan sudut oktahedral ( $BO_6$ ) dengan ion yang terletak dalam 12 koordinasi, (b) kation situs B pada pusat sel (Zhang dkk., 2011).

Dimana  $R_A$ ,  $R_B$  dan  $R_O$  merupakan jari-jari ionik dari kation situs A (koordinasi 12), kation situs B (koordinasi 6) dan ion oksigen ( $1,40 \text{ \AA}$ ), secara berurutan. Struktur kubus terletak diantara batas  $0,75 < t < 1,0$ , khususnya saat  $t = 0,8$  dan  $0,9$ . Jika jumlah  $t$  lebih rendah dari  $0,9$  tetapi lebih besar daripada  $0,75$  akan terjadi distorsi orthorombik. Selain itu, perbedaan jari-jari ionik dopan dapat menyebabkan distorsi dari struktur kubus ideal (Zhang dkk., 2011). Sebagai contoh, kristal  $GdFeO_3$  dengan nilai  $t$  yang lebih kecil ( $0,81$ ) memiliki bentuk orthorombik ( $r_A = 1,107 \text{ \AA}$  dan  $r_B = 0,78 \text{ \AA}$ ) terlihat pada Gambar 2.3 (a). Sementara itu, kristal  $BaNiO_3$  memiliki bentuk heksagonal karena  $t$  lebih besar dari 1, yaitu  $1,13$  ( $r_A = 1,61 \text{ \AA}$  dan  $r_B = 0,48 \text{ \AA}$ ). Faktor toleransi merupakan perkiraan kasar karena nilai toleransi bergantung pada jari-jari ionik,



sedangkan senyawa perovskit bukan merupakan senyawa ionik murni (Johnsson dkk., 2007).



Gambar 2.3 Distorsi struktur kristal perovskit (a) Orthorombik (b) Heksagonal (Johnsson dkk., 2007).

Selain itu, jumlah muatan kation A dan B harus sama dengan jumlah muatan anion oksigen. Netralitas muatan dapat diperoleh dengan distribusi muatan yang sesuai, seperti bentuk perovskit  $A^{1+}B^{5+}O_3$ ,  $A^{2+}B^{4+}O_3$ , dan  $A^{3+}B^{3+}O_3$ . Selain itu, substitusi parsial kation pada situs A dan B dalam kerangka perovskit dapat terjadi dengan doping kation lain yang memiliki jari-jari dan valensi kation yang berbeda-beda. Toleransi struktur perovskit terhadap perubahan komposisi tersebut berakibat pada timbulnya kekurangan kation di situs A dan B, kekurangan anion atau kelebihan anion (Sunarso dkk., 2017).

Pada umumnya, kekosongan oksigen sering terjadi pada struktur perovskit dengan kekurangan kation. Kekosongan oksigen sangat berpengaruh terhadap konduksi ionik oksigen. Kekosongan oksigen memungkinkan ion oksigen untuk berpindah secara selektif dari satu kisi ke kisi lain yang berdekatan karena adanya perbedaan potensial kimia oksigen. Selain itu, perpindahan ini hanya dapat terjadi saat ion oksigen memiliki energi termal. Konsentrasi kekosongan oksigen dapat diatur dengan substitusi ion

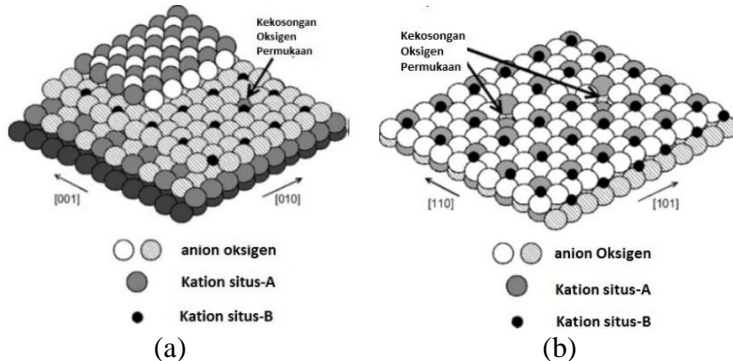
yang memiliki ukuran sama tetapi berbeda valensi. Sebagai contoh, komponen induk stoikiometri seperti  $\text{LaCoO}_3$  dan  $\text{LaFeO}_3$  didoping dengan  $\text{Sr}^{2+}$  atau  $\text{Ca}^{2+}$  untuk menggantikan tempat ion  $\text{La}^{3+}$  agar muatan listrik netral maka sekurang-kurangnya satu ion  $\text{O}^{2-}$  dibutuhkan dalam kisi sehingga terjadi pembentukan kekosongan oksigen, seperti yang terlihat pada Gambar 2.4. Kekosongan tersebut memberikan ruang anion oksigen untuk berpindah (lompatan-lompatan ion) di antara situs anion oksigen yang berdekatan dalam kisi perovskit. Oleh sebab itu, kekosongan anion oksigen yang terbentuk dapat meningkatkan mobilitas anion oksigen dalam perovskit (Sunarso dkk., 2017; Mundschoo dkk., 2008).



Gambar 2.4 Skema terbentuknya kekosongan oksigen kisi (Mundschoo dkk., 2008).

Selain itu, doping perovskit juga dapat membuat kekosongan anion oksigen pada permukaan material. Permukaan perovskit ideal (1 0 0) dan (1 1 1) menunjukkan kekosongan permukaan yang terlihat pada Gambar 2.5. Kekosongan oksigen permukaan dapat berperan sebagai sisi aktif untuk adsorpsi dan disosiasi oksigen molekular. Desorpsi oksigen molekular pada suhu tinggi

dapat menyebabkan kekosongan oksigen pada kisi perovskit. (Mundschau dkk., 2008).



Gambar 2.5 Kekosongan oksigen permukaan (a) permukaan perovskit ideal (1 0 0) dan (b) (1 1 1) (Mundschau dkk., 2008).

Berdasarkan sifat-sifat yang dimiliki perovskit tersebut (sifat konduktivitas elektron dan konduktivitas ionik yang baik), banyak perovskit yang dimodifikasi agar dapat digunakan sebagai material membran penghantar campuran ionik dan elektronik atau sebagai material katoda dalam *solid oxide fuel cells* (SOFC) (Sunarso dkk., 2017). Selain itu, mobilitas anion oksigen yang tinggi sangat dibutuhkan dalam reaksi oksidasi katalitik, membran penghantar oksigen, elektrolit padat, sensor oksigen dan berbagai aplikasi lain (Mundschau dkk., 2008). Secara teori, sifat-sifat tersebut dapat ditingkatkan dengan penggabungan kation logam dengan valensi situs A yang rendah dan penggabungan unsur-unsur logam transisi ke dalam situs B agar konsentrasi kekosongan oksigen dan konduksi elektron yang lebih tinggi dapat diperoleh (Bouwmesster dkk., 2003).

### 2.3 Sifat-sifat $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{Co}_{1-y}\text{Fe}_y\text{O}_{3-\delta}$ sebagai Penghantar Ion Oksigen

Oksida perovskit  $\text{LnCoO}_3$  ( $\text{Ln}$  = logam tanah jarang) telah diketahui memiliki konduktivitas elektronik yang tinggi, seperti  $\text{LaCoO}_3$ . Substitusi  $\text{Sr}^{2+}$  untuk  $\text{Ln}^{3+}$  telah menyebabkan kenaikan konduktivitas elektronik dan ionik dengan seiring pembentukan  $\text{Co}^{4+}$  dan kekosongan ion oksigen (Teraoka dkk., 1988). Pengaruh substitusi parsial situs A ( $\text{La}^{3+}$ ) dan situs B ( $\text{Co}^{3+}$ ) pada oksida perovskit  $\text{LaCoO}_3$  terhadap sifat konduktivitas ionik dan elektronik perovskit secara jelas telah dilaporkan Teraoka dkk. (1991). Pada penelitian tersebut dapat diketahui bahwa oksida perovskit dengan substitusi 40% Sr terhadap La dan substitusi 20% pada situs B juga berpengaruh pada nilai konduktivitas ion  $\text{La}_{0,6}\text{Sr}_{0,4}\text{Co}_{0,8}\text{B}_{0,2}$ . Saat situs B disubstitusi dengan 20% Fe terhadap Co telah menurunkan konduktivitas ionik walaupun oksida perovskit berbasis Co merupakan penghantar ion oksida yang sangat baik. Penurunan konduktivitas tersebut dikarenakan ion Fe cenderung berikatan dengan ion oksida berlebih dengan ikatan yang lebih kuat dari pada Co, sehingga substitusi Fe menurunkan konsentrasi dan mobilitas kekosongan ion oksida (Teraoka dkk., 1991).

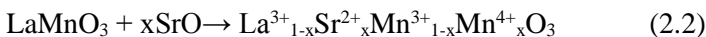
Konduksi ion oksigen pada oksida perovskit berbasis Co terjadi melalui mekanisme kekosongan ion sehingga konduktivitas ion oksida akan mencerminkan konsentrasi dan/atau mobilitas kekosongan ion oksida. Oleh karena itu, substitusi  $\text{Sr}^{2+}$  pada  $\text{La}^{3+}$  telah meningkatkan konduksi ion karena saat  $\text{Sr}^{2+}$  menggantikan posisi  $\text{La}^{3+}$  sehingga terbentuk sejumlah kekosongan ion oksigen. Permeabilitas oksigen meningkat seiring dengan meningkatnya konduktivitas ionik. Oleh karena itu, laju semi permeabilitas oksigen  $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{Co}_{1-y}\text{Fe}_y\text{O}_{3-\delta}$  meningkat dengan kenaikan kandungan Sr. Sementara itu, konduktivitas elektron pada  $\text{La}_{0,6}\text{Sr}_{0,4}\text{Co}_{0,8}\text{B}_{0,2}\text{O}_{3-\delta}$  dengan substitusi kation Fe pada situs B memberikan konduktivitas elektronik yang cukup tinggi diantara Ni dan Cu (Teraoka dkk., 1991).

Berdasarkan sifat-sifat tersebut,  $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{Co}_{1-y}\text{Fe}_y\text{O}_{3-\delta}$  (LSCF) sangat berpotensi sebagai material membran penghantar campuran

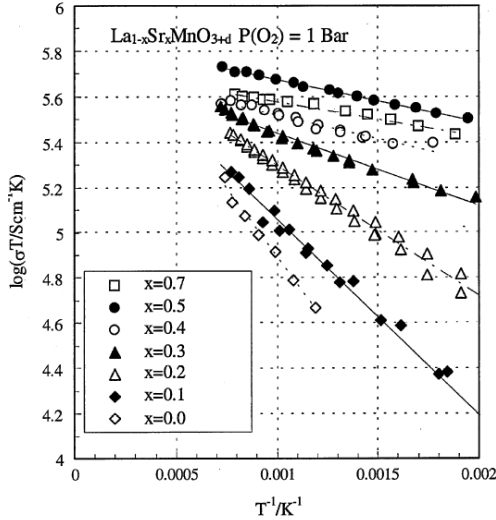
ionik dan elektronik untuk membran pemisahan oksigen karena memiliki sifat konduktivitas ionik dan elektronik yang tinggi (Tai dkk., 1995). Menurut Lee dkk. (2003) dalam penerapannya LSCF dengan kandungan Sr lebih rendah memiliki sifat mekanik, seperti kekerasan dan kekuatan patahan yang lebih dapat diterima daripada LSCF dengan kandungan Sr tinggi. Selain itu, kandungan Co yang tinggi juga menunjukkan stabilitas kimia yang rendah pada lingkungan pereduksi. Oleh sebab itu, oksida perovskit  $\text{La}_{0,6}\text{Sr}_{0,4}\text{Co}_{0,2}\text{Fe}_{0,8}\text{O}_{3-\delta}$  (LSCF) merupakan material yang berpotensi untuk digunakan sebagai membran MIEC karena memiliki fluks permeasi oksigen yang tinggi dan stabilitas yang sangat baik (Asadi dkk., 2012).

#### **2.4 Sifat-sifat $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_{3-\delta}$ sebagai Penghantar Ion Oksigen**

Lantanum strontium manganit,  $\text{LaSrMnO}_3$ , merupakan turunan dari oksida perovskit lantanum manganit,  $\text{LaMnO}_3$ . Substitusi parsial strontium pada lantanum telah memberikan peningkatan konduktivitas elektronik dan aktivitas katalitik pada lantanum manganit. Hal tersebut dikarenakan pada situs A, ion  $\text{La}^{3+}$  telah disubstitusi oleh ion  $\text{Sr}^{2+}$  sehingga terbentuk vakansi muatan pada situs B agar muatan tetap netral (Jiang, 2008). Pembentukan vakansi muatan mengakibatkan kenaikan konduktivitas elektronik, seperti yang terlihat pada Persamaan 2.2.



Konduktivitas elektronik  $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$  meningkat dengan kenaikan nilai  $x$  ( $0 \leq x \leq 0,7$ ), sedangkan konduktivitas elektronik maksimum diperoleh pada nilai  $x = 0,5$ . Peningkatan konduktivitas elektronik sesuai dengan jumlah  $x$  pada tekanan dan suhu yang tetap dapat dilihat pada Gambar 2.6 (Jiang, 2008).



Gambar 2.6 Konduktivitas elektronik La<sub>1-x</sub>Sr<sub>x</sub>MnO<sub>3</sub> ( $0 \leq x \leq 0,7$ ) (Jiang, 2008).

Walaupun La<sub>1-x</sub>Sr<sub>x</sub>MnO<sub>3</sub> memiliki konduktivitas elektron yang tinggi, namun konduktivitas ionik material ini sangat rendah, sehingga LSM dapat digunakan sebagai material membran penghantar campuran (MIEC) apabila membran LSM didukung dengan material lain yang memiliki konduktivitas ionik tinggi, seperti yang telah dilaporkan oleh Yun dkk. (2015). Pada penelitian tersebut, lantanum manganit terdoping strontium (LSM) didukung dengan zirkonia terstabilkan yttria (YSZ) berfasa fluorit yang dibuat dalam bentuk membran berlapis ganda. Pembentukan membran YSZ-LSM dibuat dengan metode *tape casting* dalam bentuk pellet yang kemudian disinter pada suhu 1400 °C selama 3 jam. Dari hasil penelitian tersebut dapat diketahui bahwa fluks oksigen yang melalui YSZ dengan penghantar elektron berupa LSM lebih besar dibandingkan membran komposit LSM/YSZ pada suhu 800 °C. Pada penelitian Yun dkk. (2015) dapat diketahui pula bahwa proses pembentukan membran penghantar campuran sangat mempengaruhi fluks oksigen atau permeabilitas oksigen.

## 2.5 Sintesis Oksida Perovskit dan Membran Datar

### 2.5.1 Sintesis Oksida Perovskit dengan Metode *Solid state*

Beberapa metode sintesis telah digunakan untuk pembuatan serbuk oksida perovskit, seperti reaksi *solid state*, metode *sol gel*, kopresipitasi, dan proses sitrat (da Côte dkk., 2013). Pada penelitian yang telah dilakukan Idayati (2008) dapat diketahui bahwa metode *solid state* mampu menghasilkan produk yang lebih banyak dibanding metode sol-gel dan kopresipitasi namun dibutuhkan waktu yang lebih lama dari pada kedua metode tersebut.

Metode reaksi *solid state* merupakan metode yang paling banyak digunakan dalam proses pembuatan serbuk oksida perovskit dengan logam lebih dari satu. Metode ini pada umumnya melibatkan proses pencampuran bahan-bahan baku berupa serbuk karbonat, serbuk oksida, serbuk hidoksida atau serbuk garam dengan jumlah yang sesuai stoikiometri dan juga melibatkan proses pemanasan serbuk campuran pada suhu lebih tinggi  $\frac{2}{3}$  daripada titik leleh dalam jangka waktu yang panjang ( $\geq 10$  jam) untuk mempermudah reaksi *solid state* prekursor hingga menjadi produk akhir yang diinginkan (fase perovskit murni). Terlepas dari suhu tinggi dan lama waktu reaksi, daerah kontak yang besar dan jarak difusi yang pendek sesuai dengan ukuran partikel serbuk-serbuk bahan baku reaksi yang kecil merupakan faktor-faktor penting untuk meningkatkan kualitas serbuk oksida perovskit yang dibuat dengan reaksi *solid state*. Ukuran partikel dan jarak difusi dapat berkurang drastis dengan pencampuran dan penggilingan serbuk-serbuk bahan baku secara mekanik. Namun, secara teknik sulit untuk menggiling serbuk dengan ukuran partikel dibawah 1 mikrometer. Oleh karena itu, biasanya serbuk perovskit yang dihasilkan dari metode reaksi *solid state* memiliki kemurnian dan homogenitas yang rendah serta menunjukkan distribusi ukuran partikel yang besar. Selain itu, reaksi yang terjadi pada suhu tinggi dapat menyebabkan permasalahan yang serius, khususnya, jika salah satu komponen dalam campuran serbuk tersebut cenderung

mudah menguap selama reaksi berlangsung dalam waktu yang panjang, contohnya barium. Namun, keuntungan dari metode ini adalah proses yang sederhana dan lebih efektif serta lebih terjangkau. Berbagai macam serbuk oksida perovskit untuk membran keramik MIEC dipersiapkan dengan metode reaksi *solid state* (Basile dkk., 2011).

Pada penelitian Möbius dkk. (2009) yang terfokus pada pengamatan sifat sintering membran keramik MIEC oksida perovskit jenis  $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{Co}_{0,2}\text{Fe}_{0,8}\text{O}_{3-\delta}$  ( $0,3 \leq x \leq 0,8$ ), oksida perovskit dibuat dengan metode reaksi *solid state*. Bahan baku yang digunakan antara lain  $\text{La}_2\text{O}_3$ ,  $\text{SrCO}_3$ ,  $\text{CoCO}_3$ , dan  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  dengan jumlah yang sesuai stoikiometri dicampur dengan mortar kemudian digiling dengan *ball mill* selama 24 jam dalam etanol. Kalsinasi dalam atmosfer udara pada suhu  $1150^\circ\text{C}$  selama 6 - 24 jam. Sementara itu, Gromada dkk. (2010) mampu menghasilkan oksida perovskit  $\text{La}_{0,6}\text{Sr}_{0,4}\text{Fe}_{0,8}\text{Co}_{0,2}\text{O}_{3+\delta}$  satu fasa dengan komposisi kimia yang diinginkan dalam waktu penggilingan (dengan *ball mill*) yang lebih singkat yaitu selama 2 jam dengan kecepatan 280 rpm. Bubur yang dipanaskan pada suhu  $70^\circ\text{C}$  kemudian proses kalsinasi dilakukan secara bertahap pada suhu  $850^\circ\text{C}$  dengan penggilingan bertahap.

Sintesis oksida perovskit  $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$  dengan metode reaksi *solid state* telah dilaporkan oleh Xu dkk. (2013). Pada penelitian tersebut, bahan baku awal proses sintesis terdiri dari serbuk murni  $\text{La}_2\text{O}_3$ ,  $\text{SrCO}_3$  dan  $\text{MnCO}_3$  yang dimasukkan ke dalam wadah penggerus dan digiling selama 10 jam, kemudian serbuk campuran dipanaskan pada suhu  $80^\circ\text{C}$  agar etanol dapat terlepas dari campuran serbuk. Setelah itu, kalsinasi pada suhu  $1000^\circ\text{C}$  dilakukan sebanyak dua kali. Serbuk digerus setiap proses kalsinasi selesai.

Tahap kalsinasi sangat mempengaruhi sifat akhir dari oksida. Pada umumnya, proses sintesis oksida perovskit dengan metode *solid state* melibatkan proses kalsinasi dengan suhu tinggi. Berdasarkan data analisis TGA oksida perovskit LSCF yang telah dilakukan oleh Maulidah dkk. (2010) dapat diketahui bahwa



perubahan campuran oksida logam menjadi oksida perovskit merupakan suatu reaksi eksotermis yang terjadi pada suhu 880 °C sehingga suhu kalsinasi padatan perovskit  $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{Co}_{1-y}\text{Fe}_y\text{O}_{3-\delta}$  sekitar 890-1100 °C.

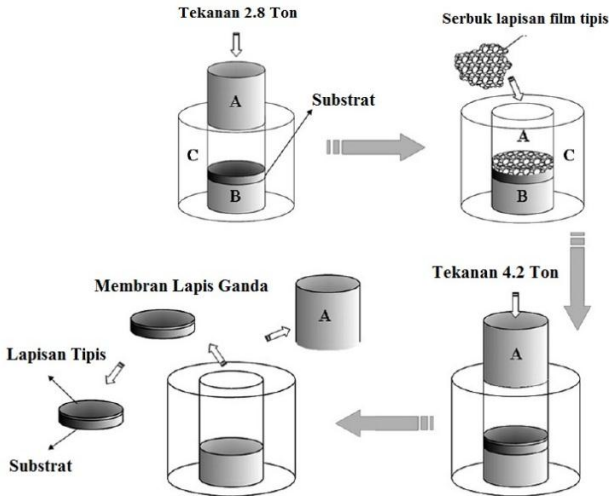
### 2.5.2 Pembuatan Membran Datar

Membran keramik MIEC berbentuk piringan (*disc membrane*) merupakan bentuk membran yang paling banyak digunakan dalam penelitian karakteristik dasar material MIEC dalam skala laboratorium karena kemudahan proses preparasi membran dengan kerapatan dan kualitas yang baik dengan bentuk membran ini.

Pada umumnya, teknik preparasi membran berbentuk piringan yang paling sederhana dan ekonomis adalah teknik *dry pressing*. Proses *dry pressing* merupakan pencetakan dengan kandungan kelembapan yang rendah, yaitu kurang dari 3% dari masanya atau tidak ada sama sekali sehingga membran mentah yang telah terbentuk dapat langsung disinter tanpa memerlukan tahap pengeringan sebelumnya. Salah satu metode pencetakan dengan proses *dry pressing* adalah *uniaxial pressing*. Pada metode *uniaxial pressing*, beban diberi tekanan satu arah ke serbuk yang berada dalam cetakan (Kaiser dan Lutz, 2011).

Tahap-tahap pembuatan membran lapis ganda dengan metode *dry pressing* secara lebih jelas telah dilakukan oleh Chen dkk. (2007). Ilustrasi dari proses pembuatan membran terlihat pada Gambar 2.7. Pada tahap awal, sejumlah serbuk substrat dimasukkan ke dalam cetakan terlebih dahulu, kemudian dicetak dan diberi tekanan hidrolik. Penekanan bertujuan agar diperoleh bentuk substrat yang lebih kompak. Setelah didiamkan beberapa saat, tekanan di lepaskan dan bagian atas cetakan dibuka. Serbuk oksida MIEC yang berperan sebagai lapisan pemisah oksigen ditambahkan ke atas permukaan substrat (didalam cetakan), kemudian bagian atas cetakan ditutup kembali secara perlahan-lahan agar serbuk bagian atas tersebar merata. Tekanan yang lebih tinggi kemudian dibebankan selama beberapa menit agar diperoleh

membran mentah lapis ganda. Setelah cetakan dilepaskan, membran mentah tersebut disinter dengan kondisi suhu yang telah diatur sesuai prosedur.



Gambar 2.7 Skema Pembentukan Membran Rapat BSCF 5528 Terlapis BSCF 5528 (Chen dkk., 2007).

Penggunaan metode *dry pressing* akan menghasilkan membran dengan lapisan atas yang lebih padat karena tekanan yang dibebankan pada tahap kedua lebih tinggi. Kekurangan dari metode ini adalah serbuk yang dimasukkan pada tahap kedua sulit untuk tersebar merata diatas permukaan substrat. Hal tersebutlah yang menyebabkan lapisan atas yang terbentuk lebih tebal dari 5  $\mu\text{m}$ . Kendala lain yang sering terjadi selama proses sintering adalah perbedaan sifat sintering material lapisan substrat dan lapisan atas (Basile dkk., 2011).

## 2.6 Nikel (II) Oksida (NiO)

Nikel (II) oksida merupakan senyawa kimia dengan rumus molekul NiO. Nama lain dari nikel (II) oksida adalah nikelus

oksida, nikel protoksida, nikel oksida hijau. Keberadaan oksida ini di alam dalam bentuk mineral bunsenite. NiO memiliki struktur kubus pusat muka (FCC) dengan parameter kisi 0,418 nm. Warna NiO tergantung pada beberapa faktor seperti kemurnian dan ukuran kristal. Pada umumnya, sifat nikel oksida bergantung pada metode pembuatannya terutama suhu. Selain itu, nikel (II) oksida memiliki sifat-sifat fisik lain, seperti kristal berbentuk kubus, berwarna hijau dengan densitas  $6,72 \text{ g/cm}^3$ , kekerasan Mohs 5,5, dan titik leleh  $1955^\circ\text{C}$ . Apabila nikel (II) oksida dibakar pada suhu tinggi maka dapat terjadi perubahan bentuk menjadi oktahedral hitam keabu-abuan yang diketahui merupakan bentuk NiO non-stoikiometri (Patnaik, 2003).

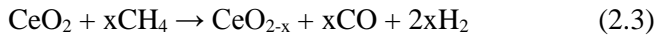
Pemanfaatan nikel banyak dikembangkan pada bidang katalis. Menurut beberapa hasil penelitian menunjukkan logam transisi Ni sangat reaktif untuk proses oksidasi parsial metana. Nikel merupakan salah satu logam transisi yang mempunyai aktivitas sebanding dengan logam mulia dalam reaksi katalitik oksidasi parsial metana. Namun, endapan karbon sering terbentuk pada permukaan Ni saat reaksi berlangsung sehingga konversi produk menurun dan katalis Ni mengalami deaktivasi (Singha dkk., 2016), sehingga para peneliti terfokus pada pengembangan katalis pendukung nikel katalis, seperti katalis  $\text{Ni/Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Ni/MgO}$ ,  $\text{Ni/La}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Ni/NaZSM}$ . Selain itu, katalis perovskit juga dapat digunakan sebagai katalis pendukung katalis berbasis nikel, seperti yang telah dilakukan oleh Shishido dkk. (2002). Pada penelitian tersebut dapat diketahui bahwa katalis pendukung berupa perovskit  $\text{CaTiO}_3$ ,  $\text{SrTiO}_3$ ,  $\text{BaTiO}_3$  dan  $\text{LaAlO}_3$  menunjukkan kemampuan yang lebih baik dibandingkan katalis sebelumnya ( $\text{Ni/Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Ni/LaAlO}_3$ ) (Al-Sayari, 2013).

## 2.7 Cerium (IV) Oksida ( $\text{CeO}_2$ )

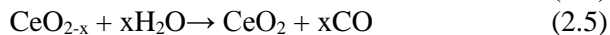
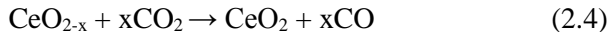
Cerium (IV) oksida atau yang disebut dengan ceria ( $\text{CeO}_2$ ) merupakan oksida logam tanah jarang cerium.  $\text{CeO}_2$  memiliki struktur unit sel kristal kubus berpusat muka (FCC) dengan gugus ruang  $\text{Fm}\bar{3}\text{m}$ . Konstanta kisi,  $a$ , adalah 0,35658 (12) nm, namun

nilai ini berubah sesuai dengan oksidasi bilangan oksidasi (Glas, 2013). Cerium memiliki bilangan oksidasi yang mampu bergantian antara  $\text{Ce}^{3+}$  dan  $\text{Ce}^{4+}$  sehingga  $\text{CeO}_2$  dapat berperan sebagai penyangga oksigen (*oxygen buffer*) dengan cara melepaskan dan menyimpan  $\text{O}_2$ . Ceria memiliki kapasitas penyimpanan/pelepasan oksigen yang tinggi sehingga senyawa ceria sangat baik dalam reaksi oksidasi (Bulfin dkk., 2013).

Tahap 1:

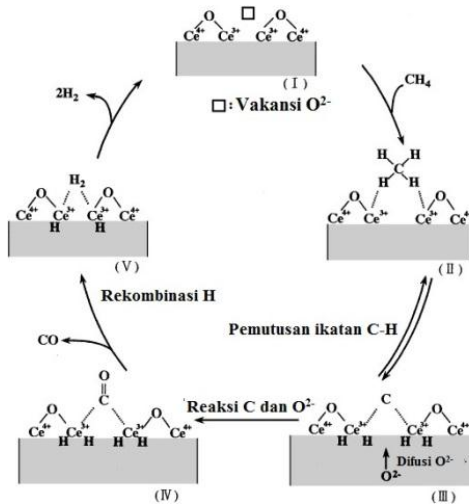


Tahap 2:



Pada penelitian yang dilakukan oleh Otsuka dkk. (1998) telah dilaporkan bahwa  $\text{CeO}_2$  mampu berperan sebagai oksidan (bukan sebagai katalis) dalam reaksi oksidasi parsial metana tanpa adanya aliran gas  $\text{O}_2$ . Berdasarkan penelitian tersebut dapat diketahui bahwa  $\text{CH}_4$  yang bereaksi dengan  $\text{CeO}_2$  pada persamaan 2.4 dapat menghasilkan  $\text{H}_2$  dan  $\text{CO}$  dengan rasio 2. Cerium oksida yang tereduksi ( $\text{CeO}_{2-x}$ ) dapat diperoleh kembali dengan reaksi antara  $\text{CeO}_{2-x}$  dan  $\text{CO}_2$  atau  $\text{H}_2\text{O}$  pada persamaan 2.5 dan 2.6. Bersamaan dengan terbentuknya  $\text{CeO}_2$ , terbentuk juga  $\text{H}_2$  dan  $\text{CO}$  murni.

Secara termodinamika, reaksi oksidasi metana oleh  $\text{CeO}_2$  lebih banyak terjadi pada suhu  $>600^\circ\text{C}$ , sementara reaksi pada tahap 2 lebih aktif pada suhu  $<700^\circ\text{C}$ . Pada penelitian sebelumnya, reaksi oksidasi parsial metana dengan  $\text{CeO}_2$  berlangsung pada suhu  $\geq 700^\circ\text{C}$ , sementara reaksi pada tahap 2 berlangsung pada suhu  $400\text{--}600^\circ\text{C}$ . Jika dibandingkan dengan reaksi tahap 2, reaksi tahap berlangsung pada suhu yang lebih tinggi, yaitu  $>600^\circ\text{C}$ , hal tersebut disebabkan laju reaksi lebih lambat. Secara lebih lengkap mekanisme reaksi antara  $\text{CH}_4$  dengan  $\text{CeO}_2$  terlihat pada Gambar 2.8 (Otsuka dkk., 1998).



Gambar 2.8 Mekanisme pembentukan *syngas* dari reaksi oksida parsial metana dengan  $CeO_2$  (Otsuka dkk., 1998).

## 2.8 Karakterisasi Oksida Perovskit

### 2.8.1 Analisis Difraksi Sinar-X (XRD)

Difraksi sinar-X merupakan metode analisis yang digunakan untuk karakterisasi *fingerpint* material kristalin dan struktur kristal material tersebut (West., 1984). Sinar-X merupakan radiasi elektromagnetik dengan panjang gelombang sekitar  $1 \text{ \AA}$  ( $10^{-10} \text{ m}$ ). Panjang gelombang tersebut sesuai dengan ukuran atom sehingga sinar-X dapat digunakan untuk mengidentifikasi struktur dari susunan atom (Prasetyoko dkk., 2016).

Interpretasi difraksi sinar-X didasarkan oleh hukum Bragg. Hukum Bragg digunakan untuk menentukan sudut pantulan. Sudut pantulan tersebut dapat terjadi pada puncak-puncak dengan intensitas luas. Komposisi ditentukan dengan identifikasi posisi dan intensitas puncak-puncak difraksi kristal yang khas.

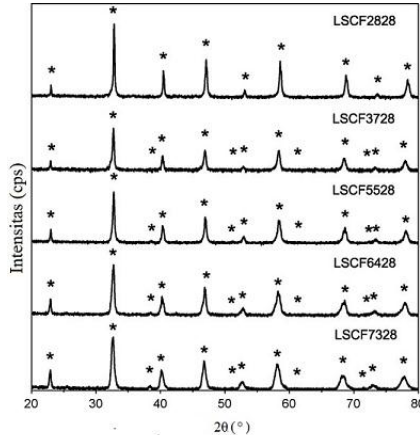
Saat sinar-X dengan panjang gelombang yang telah diketahui dikenakan pada padatan kristalin, permukaan kristalin tersebut akan melakukan difraksi, sesuai dengan hukum Bragg dimana

gelombang yang dipantulkan tidak akan berada pada fase kecuali hubungan Persamaan 2.6 telah sesuai.

$$n\lambda = 2 d \sin \theta \quad (2.6)$$

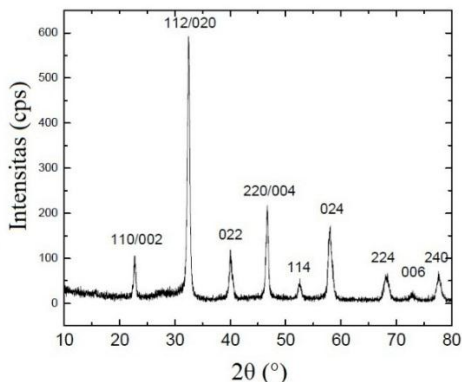
Berdasarkan Hukum Bragg tersebut dapat ditentukan jarak antar permukaan atom ( $d$ ) dan fasa kristalin ketika terjadi hubungan antar bidang konstruktif (Leng, 2013).

Pada penelitian Möbius dkk. (2009), instrumen difraksi sinarX ini digunakan dalam karakterisasi fase oksida perovskit  $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{Co}_{0.2}\text{Fe}_{0.8}\text{O}_{3-\delta}$  ( $0.3 \leq x \leq 0.8$ ) yang telah disintesis dengan metode *solid state*. Karakterisasi dilakukan dengan rentang sudut  $2\theta$  sebesar  $20\text{--}80^\circ$ . Dari difraktogram yang terlihat pada Gambar 2.9 dapat diketahui bahwa oksida perovskit LSCF 2828, LSCF 3728, LSCF 5528, LSCF 6428, dan LSCF 7328 memiliki puncak-puncak difraktogram yang serupa berupa fase tunggal dengan rata-rata ukuran partikel  $d_{50}$  sekitar  $0.5 \mu\text{m}$ .

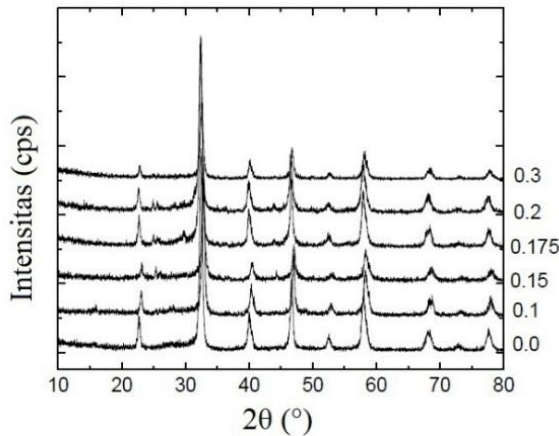


Gambar 2.9 Difraktogram perovskit  $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{Co}_{0.2}\text{Fe}_{0.8}\text{O}_{3-\delta}$  ( $0.3 \leq x \leq 0.8$ ) (Möbius dkk., 2009).

Pada penelitian Xu dkk. (2013)  $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$  dengan beberapa komposisi ( $x = 0; 0,1; 0,15; 0,175; 0,2; 0,3$ ) telah disintesis dengan metode *solid state* kemudian struktur dari sampel dikarakterisasi menggunakan difraksi sinar-X radiasi Cu Ka ( $\lambda = 0.154056 \text{ nm}$ ) pada rentang sudut  $2\theta$  adalah  $10\text{--}80^\circ$ . Difraktogram sampel  $\text{LaMnO}_3$  yang merupakan induk perovskit  $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$  terlihat pada Gambar 2.10. Dari difraktogram tersebut terlihat bahwa sampel memiliki polikristal berfasa tunggal. Sampel memiliki simetri orthorombik dengan konstanta kisi  $a=0,339 \text{ \AA}$ ,  $b=5,496 \text{ \AA}$ ,  $c=7,784 \text{ \AA}$ . Pada penelitian tersebut diketahui bahwa terjadi perubahan puncak difraksi  $2\theta=32,5^\circ$  dan  $46,6^\circ$  pada LSM dengan kadungan Sr yang berbeda yang terlihat pada Gambar 2.1. Konstanta dan simetri kristal berubah karena ion  $\text{Mn}^{3+}$  berubah menjadi  $\text{Mn}^{4+}$  yang diakibatkan doping Sr terhadap La. Panjang ikatan ion  $\text{O}^{2-}$  dan ion  $\text{M}^{4+}$  lebih pendek karena peningkatan jumlah  $\text{Mn}^{4+}$  hasil doping Sr. Interaksi keduanya melemahkan distorsi Jahn-Teller struktur sampel yang semakin kecil sehingga struktur kristal sampel bervariasi dari simetri rendah ke simetri tinggi, secara bertahap. Hasil menunjukkan bahwa oksida mangan berubah ke simetri tertinggi dari struktur kubus simetri saat kandungan lebih dari 70%.



Gambar 2.10 Difraktogram sinar-X  $\text{LaMnO}_3$  setelah disinter pada suhu  $1000^\circ\text{C}$  (Xu dkk., 2013).



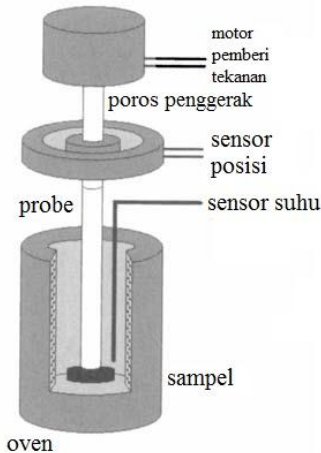
Gambar 2.11 Difraktogram sinar-X  $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$  dengan variasi kandungan Sr (Xu dkk., 2013).

## 2.9 Analisis dan Uji Sifat Mekanik Membran Keramik

### 2.9.1 Thermomechanical Analysis (TMA)

TMA merupakan suatu teknik pengukuran dimensi padatan (panjang atau volum) yang dipengaruhi oleh perubahan suhu pada tekanan konstan. Pada umumnya, serangkaian alat TMA secara skematik dapat dilihat pada Gambar 2.12. Sampel yang berupa padatan dengan ukuran diameter  $< 1$  mm ditempatkan di dalam wadah sampel. Suhu diatur dengan termokopel yang terletak didekat wadah sampel. Sementara itu, fasilitas pendingin kriogenik berupa gas nitrogen dingin berasal dari wadah Dewar nitrogen cair. Atmosfer sekitar sampel dikontrol dengan cara membersihkan oven dengan gas atau nitrogen yang berasal dari silinder (Haines, 2002).

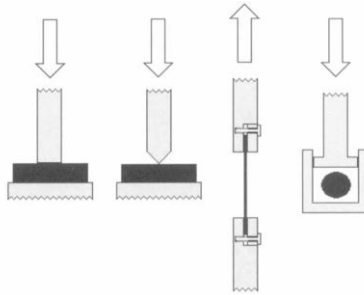




Gambar 2.12 Skema alat analisis termomekanik (Haines, 2002).

Alat TMA dilengkapi dengan probe yang terletak pada bagian atas permukaan sampel yang berfungsi untuk menentukan gaya statis dan tekanan yang diberikan oleh alat berat atau motor elektromagnetik kepada sampel. Pergerakan probe tersebut kemudian diukur dan diubah dalam bentuk sinyal listrik oleh alat transduser seperti sensor kapasitansi (bergantung pada jarak antar dua plate, dimana salah satu plate bergerak dan plate yang lain tidak bergerak) (Haines, 2002).

Probe memiliki bentuk yang beragam sesuai dengan pengukuran yang diinginkan (Gambar 2.13), yaitu jenis (i) probe kompresi dengan bentuk area kontak datar yang bertujuan untuk mengetahui nilai koefisien muai panas sampel, (ii) probe penetrasi, yaitu probe dengan area kontak probe yang tajam atau berbentuk bulat pada bagian ujungnya. Probe jenis ini bertujuan untuk mengetahui suhu *softening* sampel, (iii) probe tegangan, yaitu probe yang bertujuan untuk mengukur pertambahan panjang sampel yang berbentuk serabut (fiber) atau film, (iii) probe volumetrik bertujuan untuk mengetahui muai volume sampel (Haines, 2002).



Gambar 2.13 Jenis-jenis probe TMA (kiri-kanan); kompresi, penetrasi, tensi, volumetrik (Haines, 2002)

Probe kompresi merupakan salah satu probe TMA yang paling banyak digunakan. Probe kompresi bertujuan untuk mengetahui nilai koefisien muai panas sampel. Nilai koefisien muai panas dapat diperoleh dari Persamaan 2.6 (West, 1984; Haines, 2002).

$$\alpha l_o = dl/Dt \quad 2.7$$

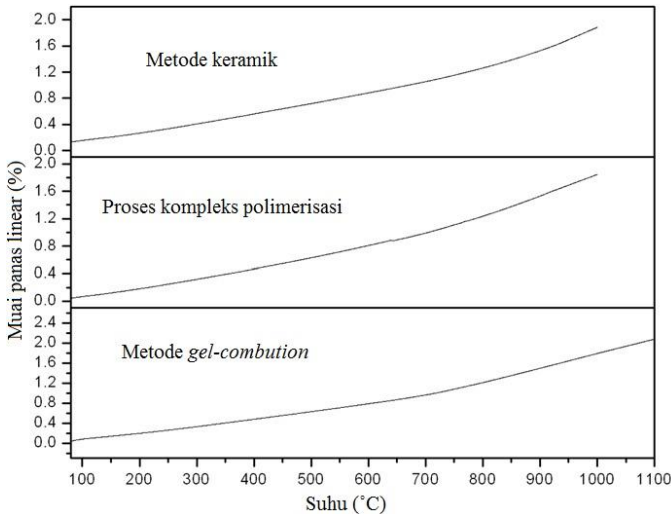
Dimana  $\alpha$  koefisien muai panas ( $\text{ppm}/^\circ\text{C}$  atau  $\mu\text{m}/\text{m}^\circ\text{C}$ ),  $l_o$  panjang awal sampel (m) dan  $dl/dT$  adalah laju perubahan panjang sampel terhadap perubahan suhu ( $\mu\text{m}/^\circ\text{C}$ ). Nilai koefisien muai panas berguna untuk memperkirakan kompatibilitas komponen yang terdiri dari bahan yang berbeda. Ketidaksesuaian sifat pemuaian dapat mengakibatkan bertambahnya tekanan saat terjadi perubahan suhu sehingga struktur akan semakin lemah dan rusak (Haines, 2002).

Penentuan nilai koefisien muai panas  $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{Co}_{0.2}\text{Fe}_{0.8}\text{O}_{3-\delta}$  (LSCF 6428) telah dilakukan oleh Nityanand dkk. (2011) dengan instrumen TMA pada rentang suhu  $100\text{--}1100^\circ\text{C}$ . Pada penelitian tersebut, LSCF 6428 disintesis dengan tiga metode berbeda, yakni kompleks polimerisasi, pembakaran gel (*gel-combustion*), dan keramik. Kurva linear muai panas LSCF ditunjukkan pada Gambar 2.14. Semua sampel LSCF menunjukkan kurva muai panas yang tidak linier dengan infleksi (perubahan bentuk kurva)

pada rentang suhu  $\sim 650\text{-}800\text{ }^{\circ}\text{C}$ . Pada rentang suhu yang lebih tinggi ( $700\text{-}1000\text{ }^{\circ}\text{C}$ ) terjadi perubahan kemiringan kurva pemuaian panas. Perubahan tersebut mengindikasikan terjadinya peningkatan laju pemuaian panas pada suhu tinggi. Nilai koefisien muai panas linier rata-rata ( $\alpha$ ) sampel LSCF yang disintesis dengan metode yang berbeda terangkum dalam Tabel 2.1. Dari data tersebut terlihat nilai koefisien muai panas rata-rata pada rentang suhu yang lebih tinggi ( $700\text{-}1000\text{ }^{\circ}\text{C}$ ) mengalami peningkatan dua kali lebih besar dari pada rentang suhu yang lebih rendah ( $100\text{-}700\text{ }^{\circ}\text{C}$ ). Perubahan kemiringan tersebut juga dikarenakan hilangnya oksigen kisi dan pembentukan kekosongan oksigen (vakansi oksigen). Pembentukan kekosongan oksigen terjadi secara bersamaan dengan reduksi kation situs B dari bilangan oksidasi tinggi ke bilangan oksidasi rendah, yaitu  $\text{Co}^{4+}$  dan  $\text{Fe}^{4+}$  menjadi  $\text{Co}^{3+}$  dan  $\text{Fe}^{3+}$  yang bertujuan untuk menjaga muatan tetap netral. Perubahan bilangan oksidasi tersebut diikuti dengan peningkatan jari-jari ionik, khususnya untuk reduksi  $\text{Co}^{4+}$  ( $0,067\text{ nm}$ ) menjadi  $\text{Co}^{3+}$  ( $0,0075\text{ nm}$ ). Reduksi kation juga berdampak pada penurunan ikatan B-O yang terjadi sesuai dengan aturan kedua Pauling dan dalam hal ini ukuran oktahedral  $\text{BO}_6$  meningkat seiring kenaikan muai kisi (Nityanand dkk., 2011).

Tabel 2.1 Rata-rata Nilai koefisien muai panas LSCF 6428 dalam rentang yang berbeda-beda (Nityanand dkk., 2011).

Metode Sintesis	Rentang suhu ( $^{\circ}\text{C}$ )	Rata-rata Koefisien Muai Panas ( $1 \times 10^{-6}\text{ K}^{-1}$ )
Metode Keramik	100-700	14,97
	100-1000	19,19
	700-1000	27,70
Proses Kompleks Polimerisasi	100-700	15,38
	100-1000	19,76
	700-1000	28,54
Metode <i>Gel-Combution</i>	100-650	14,31
	100-1000	18,98
	800-1300	27,01



Gambar 2.14 Sifat muai panas LSCF yang disintesis dengan metode berbeda (Nityanand dkk., 2011).

### 2.9.2 Uji Kekerasan Vicker

Kekerasan merupakan salah satu sifat mekanik material yang dapat didefinisikan sebagai ukuran ketahanan material terhadap beban indentasi atau penetrasi (penekanan). Kekerasan material dapat diukur dengan beberapa metode uji kekerasan, salah satunya adalah uji kekerasan indentasi mikro Vicker (Callister, 2010).

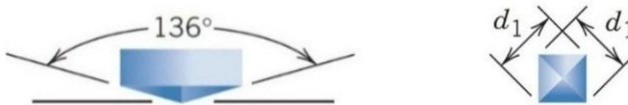
Kekerasan menurut Vicker didefinisikan sebagai rasio  $F/A$  (tekanan  $F$ , luas indentasi  $A$ ) oleh karena itu terdapat dimensi tekanan (Boubaker dkk., 2003).  $A$  dapat ditentukan dengan Persamaan 2.7-2.8, sedangkan nilai kekerasan Vicker dapat ditentukan dengan Persamaan 2.9. Satuan uji kekerasan ini adalah *Vicker's Pyramid Number* (HV) atau *Diamond Pyramid Hardness* (DPH). Bilangan kekerasan dapat dikonversi dalam satuan paskal (Smith dan Sandland, 1922)

$$A \approx \frac{d^2}{2 \sin\left(\frac{136^\circ}{2}\right)} \quad (2.8)$$

$$A \approx \frac{d^2}{1,8544} \quad (2.9)$$

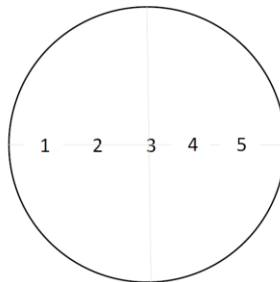
$$HV = \frac{F}{A} \approx \frac{1.8533F}{d^2} \quad [\text{kgf/mm}^2] \quad (2.10)$$

Indentasi kekerasan Vicker terbuat dari berlian piramida bujur sangkar dengan sudut puncak  $136^\circ$  terhadap permukaan sampel, seperti yang terlihat pada Gambar 2.15. Berlian tidak mudah berubah bentuk pada beban tinggi sehingga besar beban yang dapat diberikan berkisar antara 1 sampai 120 kgf selama antara 10 dan 15 detik (Boubaker dkk., 2003).



Gambar 2.15 Indentor kekerasan Vicker berbentuk piramida (Calliester,2010).

Pada beberapa penelitian sebelumnya, uji kekerasan mikro Vicker digunakan dalam karakterisasi sifat mekanik membran keramik oksida perovskit, seperti yang telah dilakukan oleh Fansuri dkk. (2011) pada membran keramik rapat  $\text{La}_{1-x}\text{Ca}_x\text{Co}_{0,8}\text{Fe}_{0,2}\text{O}_{3-\delta}$  (LCCF). Pengujian kekerasan dilakukan dengan beban indentasi sebesar 0,5 kgf dan waktu indentasi selama 30 detik pada lima titik seperti yang terlihat pada Gambar 2.16, sedangkan hasil uji kekerasan membran LCCF dengan variasi kandungan Ca terlihat pada Tabel 2.2. Dari hasil tersebut terlihat bahwa kekerasan membran LCCF semakin tinggi seiring dengan kenaikan jumlah substituen  $\text{Ca}^{2+}$ .



Gambar 2.16 Posisi titik-titik indentasi di permukaan membran LCCF (Fansuri dkk., 2012).

Tabel 2.2 Kekerasan membran LCCF (Fansuri dkk., 2012)

Titik Indentasi	Kekerasan (HV)			
	LCCF 9182	LCCF 8282	LCCF 7382	LCCF 6482
1	989,7	1002,0	933,1	1517,0
2	854,4	892,4	1165,0	1090,0
3	837,0	733,3	1284,0	1024,0
4	905,3	967,2	960,9	1188,0
5	924,0	982,2	1122,0	1074,0
Rata-rata	902,0	915,4	1093,0	1178,6

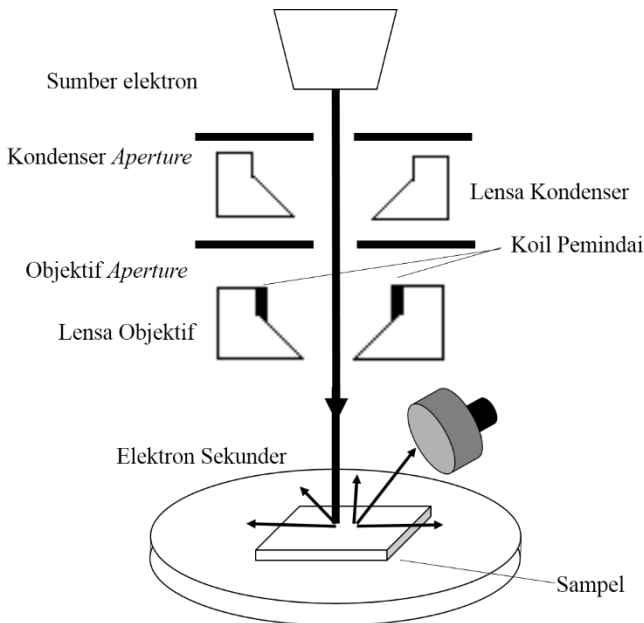
### 2.9.3 *Scanning Electron Microscope-Energy Dispersive X-Ray (SEM-EDX)*

Instrumen SEM-EDX merupakan gabungan antara dua unit yang terpisah, yaitu SEM dan EDX. Kombinasi antar dua unit tersebut memungkinkan terjadinya pengamatan morfologi atau topografi bahan dan analisis sebaran unsur-unsur bahan dalam satu alat atau dapat dikatakan bahwa seluruh operasi, termasuk pengukuran dengan EDX, dapat dikontrol dengan SEM. Prosedur yang sama dapat digunakan untuk mengetahui sebaran unsur-unsur pada seluruh daerah yang diamati dengan SEM (Yurugi dkk., 2001).

Mikroskop elektron *scanning (Scanning electron Microscopy/SEM)* merupakan bagian dari mikroskop elektron yang menggunakan berkas elektron sebagai pengganti cahaya pada

mikroskop optik konvensional. Pembesaran dengan mikroskop elektron dapat dicapai hingga lebih dari 1,000,000 kali dengan resolusi tinggi, sedangkan mikroskop optik hanya mampu diperbesar hingga 100 kali (Vernon-Parry, 2000).

SEM terdiri atas beberapa komponen seperti sistem vakum, sumber berkas elektron, sistem lensa, koil scan, sistem deteksi, proses sinyal, *display* dan perekam (terlihat pada Gambar 2.17).

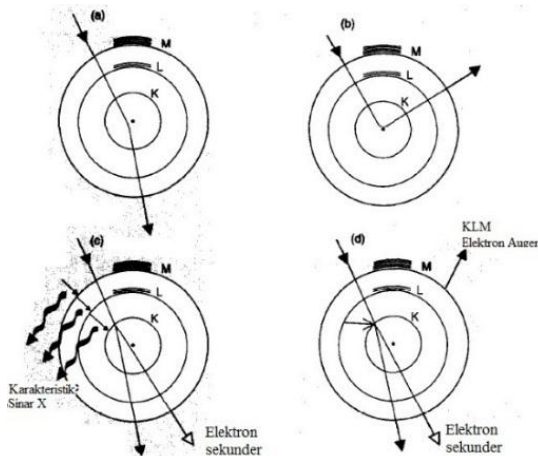


Gambar 2.17 Skema alat *Scanning Electron Microscope (SEM)* (Nugroho, 2014).

Berkas elektron dihasilkan dari sumber berkas elektron (*electron gun*). Pada umumnya, sumber berkas elektron berupa filamen yang terbuat dari tungsten. Aliran listrik akan memanaskan filamen pada suhu 2500 °C (filamen tungsten) untuk menghasilkan berkas elektron yang akan bergerak turun menuju sampel. Pergerakan berkas elektron hingga menumbuk sampel harus terjadi

pada kondisi vakum karena elektron secara cepat dapat terdispersi apabila bertumbukan dengan molekul lain. Berkas elektron tersebut kemudian akan dikumpulkan oleh lensa kondenser pertama. Ada dua hingga tiga lensa kondenser dan *kondenser aperture* bertujuan untuk menghilangkan elektron bersudut tinggi pada berkas sehingga elektron menjadi berkas yang tipis, kuat, koheren yang terkontrol. Selanjutnya, objektif aperture akan menghilangkan elektron dengan sudut tinggi dari berkas. Seperangkat koil kemudian memindai atau menyapu berkas pada seluruh permukaan sampel, baris demi baris. Sebelum berkas elektron mencapai permukaan sampel, lensa objektif akan memfokuskan berkas scan pada bagian sampel yang diinginkan (Prasetyoko dkk., 2017).

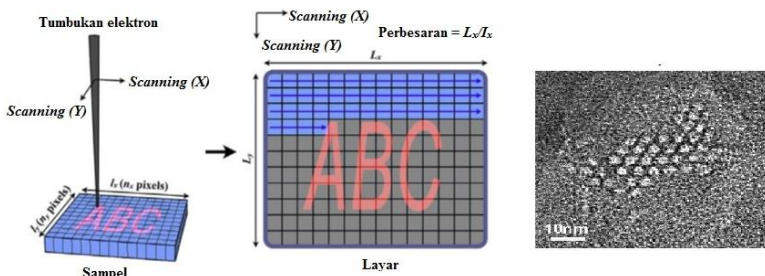
Interaksi antara berkas elektron dengan atom-atom penyusun sampel menghasilkan elektron sekunder, hamburan balik, dan Auger, serta sinar-X seperti yang terlihat pada Gambar 2.18.



Gambar 2.18 Beberapa interaksi antara elektron berenergi tinggi dan atom. (a) Hamburan sudut rendah (b) Elektron hamburan balik; (c) Emisi elektron sekunder dan karakteristik sinar-X; (d) Emisi elektron sekunder dan elektron Auger (Vernon-Parry, 2000).

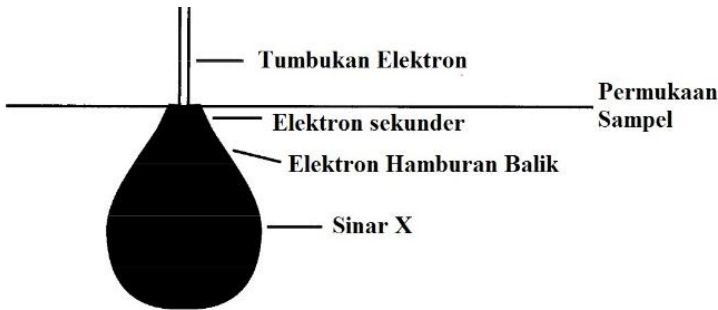


Elektron-elektron tersebut kemudian akan dikumpulkan oleh detektor, kemudian dikonversi menjadi tegangan listrik dan diamplifikasikan. Tegangan teramplifikasi yang mengenai detektor akan mengubah intensitas titik cahaya (Prasetyoko dkk., 2017). Ribuan titik-titik dengan intensitas yang berbeda-beda akan membentuk pola sesuai dengan garis pemindai berkas elektron kemudian pola tersebut akan menghasilkan gambar yang terlihat pada layar monitor (*raster*), seperti yang terlihat pada Gambar 2.19. Perbesaran gambar tersebut merupakan hasil perbandingan antara luas permukaan yang terpampang pada monitor dengan luas permukaan yang terpindai (*ter-scan*) pada sampel (Vernon-Parry, 2000).



Gambar 2.19 Skema dasar pelepasan berkas elektron melintasi sampel dan sinyal yang dipancarkan dan dipindahkan sebagai fungsi posisi gambar atau monitor (Suga dkk., 2014).

Berbagai sinyal dari spesimen yang dapat dikumpulkan dan digunakan untuk pembentukan gambar tergantung pada kedalaman interaksi antara berkas elektron dengan sampel. Sinyal tersebut berasal dari volume interaksi antara berkas elektron dan sampel, terlihat pada Gambar 2.20.



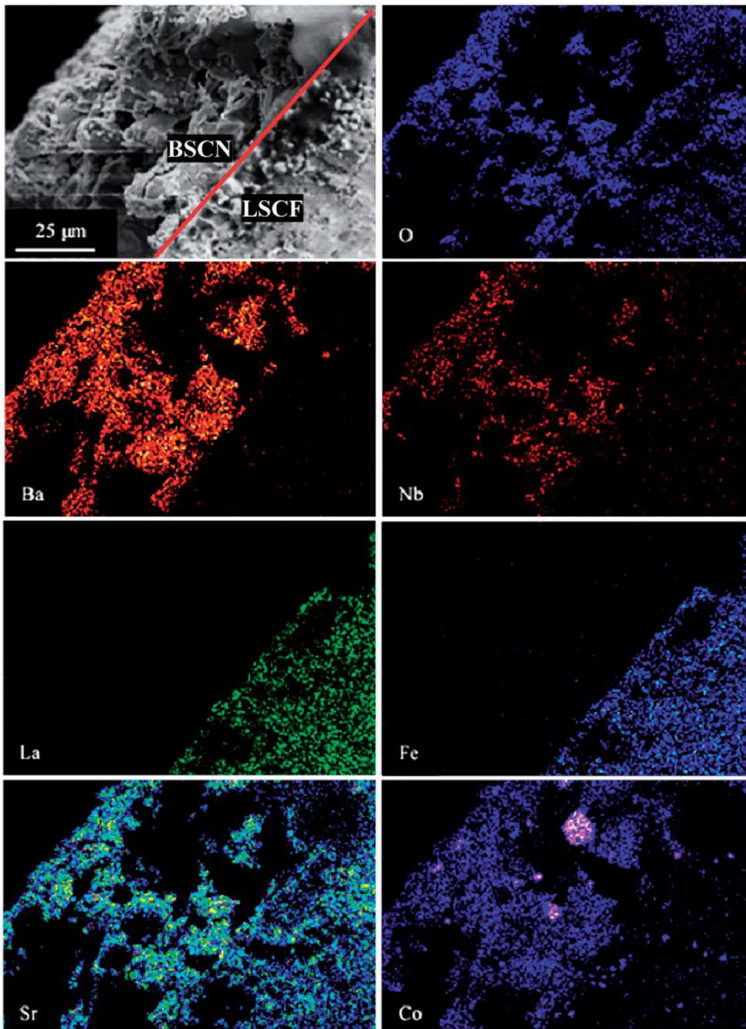
Gambar 2.20 Volume interaksi sampel dengan berkas elektron dan daerah asal elektron dan sinar-X yang terdispersi dapat dipancarkan (Vernon-Parry, 2000).

Gambar Elektron sekunder berasal dari pancaran elektron-elektron yang terlepas dari orbital terluar atom dengan energi dibawah 50 eV akibat adanya tumbukan berkas elektron pada daerah terdekat permukaan sampel (interaksi volume yang sangat dangkal). Informasi yang diberikan berupa topografi permukaan sampel. Sementara itu, gambar elektron hamburan balik berasal dari elektron yang terhambur dengan sudut besar akibat adanya interaksi berkas elektron dengan elektron-elektron yang cukup dekat inti atom sampel. Elektron tersebut kemudian muncul kembali dari permukaan. Informasi yang diberikan berupa kristalografi, unsur-unsur penyusun sampel energi (Vernon-Parry, 2000).

Energy dispersive X-Ray spetrometry (EDX) merupakan metode yang digunakan untuk mendeteksi karakteristik sinar-X yang dipancarkan sampel. Seluruh spektrum pancaran sinar-X terdeteksi secara bersamaan oleh suatu proses penyerapan sinar-X dengan bahan semikonduktor, seperti Si atau Ge, yang menyebabkan eksitasi elektron dan pembentukan pasangan *electron hole*. Pasangan *electron hole* disapu oleh tegangan yang diberikan dan dideteksi sebagai pulsa voltase yang diperkuat dan ditampilkan pada layar. Pada prinsipnya, pulsa voltase sebanding dengan energi sinar-X yang merupakan karakteristik unsur-unsur

penyusun sampel. Oleh karena itu, EDX sangat berguna untuk mendapatkan gambaran umum tentang unsur-unsur yang ada dalam sampel, walaupun kurang sensitif untuk unsur-unsur ringan (West, 2014).

Analisa SEM-EDX dari membran serat berongga  $\text{La}_{0,6}\text{Sr}_{0,4}\text{Co}_{0,2}\text{Fe}_{0,8}\text{O}_{3-\delta}$  (LSCF 6428) terlapis lapisan berpori  $\text{Ba}_{0,5}\text{Sr}_{0,5}\text{Co}_{0,9}\text{Nb}_{0,1}\text{O}_{3-\delta}$  (BSCN 5591) dilakukan oleh Han dkk., (2014). Membran serat berongga LSCF 6428 dibuat dengan metode infersi fasa dengan komposisi larutan pemintal (spinning) berupa 62,98% berat serbuk LSCF, 6,30% berat polietilensulfon (PESf), 25,18% berat 1-metil-2-pirolidin (NMP) sebagai pelarut, 3,71% polivinil pirolidon (PV) dan 1,85% berat aqua-DM sebagai aditif non pelarut. Prekursor serat berongga disinter pada suhu 1300 °C selama 4 jam dengan laju kenaikan dan pendinginan suhu 2 °C/menit. Lapisan BSCN berpori dilapiskan pada membran serat berongga LSCF dengan metode *dip coating* tunggal, kemudian dipanaskan hingga suhu 1000 °C dengan laju kenaikan suhu 5 °C/menit. Gambar 2.21 menunjukkan morfologi dan pemetaan unsur EDX pada gambar SEM di area antarmuka (ditandai dengan garis merah) lapisan BSCN dan LSCF. Berdasarkan gambar tersebut dapat dilihat bahwa beberapa unsur Sr, Co dan O terdistribusi secara homogen ke seluruh sampel BSCN-O. Namun, La/Fe atau Ba hanya dapat dideteksi pada lapisan LSCF atau BSCN. Unsur Nb dalam jumlah kecil menembus ke dalam lapisan LSCF setelah dipanaskan. Hal ini dapat menyebabkan kemampuan permeasi oksigen yang berbeda-beda pada membran LSCF terlapis.



Gambar 2.21 Morfologi dan pemetaan unsur EDX pada gambar SEM di area antarmuka lapisan BSCN dan LSCF (Han dkk., 2014).

## **BAB III**

### **METODOLOGI PENELITIAN**

#### **3.1 Alat dan Bahan**

##### **3.1.1 Alat**

Peralatan yang digunakan dalam penelitian ini terdiri dari krusibel porselin, spatula, cawan penguapan, *planetary ball-mill*, *hot plate*, *muffle furnace*, *high temperature furnace*, oven, desikator, neraca analitik, pengempa hidrolik, dan pencetak membran berbahan baja tahan karat berdiameter 13 mm. Sementara itu, peralatan karakterisasi perovskit, analisis dan uji membran terdiri dari difraktometer sinar-X (PANalytical Expert system) bertempat di Jurusan Material dan Metalurgi ITS Surabaya, *Scanning Electron Microscopy* dan *Energy Dispersive X-Ray* (SEM-EDX) (ZEISS EVO MA 10 percepatan tegangan 10 kV), analisis termomekanik (TMA) (TMA/SDTA 840 METLER TOLEDO), dan *Vicker's Microhardness Tester* MITUTOYO tipe 211 bertempat di Laboratorium Energi dan Lingkungan LPPM ITS Surabaya

##### **3.1.2 Bahan**

Bahan-bahan yang digunakan dalam penelitian ini adalah serbuk-serbuk oksida dan karbonat seperti oksida lantanum ( $\text{La}_2\text{O}_3$ ) p.a 99,5% (Merck), strontium karbonat ( $\text{SrCO}_3$ ) p.a 99,9% (Merck), oksida kobalt ( $\text{Co}_3\text{O}_4$ ) p.a 99,5% (Merck), oksida besi ( $\text{Fe}_2\text{O}_3$ ) p.a 97% (Merck), mangan dioksida ( $\text{MnCO}_3$ ) p.a 99,9% (Merck), serta oksida nikel ( $\text{NiO}$ ) (Merck), dan cerium dioksida ( $\text{CeO}_2$ ) (Merck), Amilum.

#### **3.2 Metode Penelitian**

##### **3.2.1 Sintesis Oksida Perovskit**

Metode *solid state* digunakan dalam sintesis oksida perovskit  $\text{La}_{0,7}\text{Sr}_{0,3}\text{Co}_{0,2}\text{Fe}_{0,8}\text{O}_{3-\delta}$  (LSCF 7328),  $\text{La}_{0,6}\text{Sr}_{0,4}\text{Co}_{0,2}\text{Fe}_{0,8}\text{O}_{3-\delta}$  (LSCF 6428), dan  $\text{La}_{0,7}\text{Sr}_{0,3}\text{Mn}_{0,3}\text{O}_{3\pm\delta}$  (LSM 7310). Semua oksida dan

karbonat dikeringkan dengan *oven* pada suhu 105 °C selama 1 jam, kemudian didiamkan sampai dingin di dalam desikator. Setelah itu, masing-masing bahan yang terdiri dari  $\text{La}_2\text{O}_3$ ,  $\text{SrCO}_3$ ,  $\text{Co}_3\text{O}_4$ ,  $\text{Fe}_2\text{O}_3$ ,  $\text{MnCO}_3$  ditimbang dengan masa sesuai komposisi stoikiometris oksida perovskit yang disintesis. Jumlah masing-masing reaktan pada tiap komposisi perovskit ditampilkan pada Tabel 3.1. Bahan yang telah ditimbang tersebut dimasukkan ke dalam wadah *ball-mill* yang telah berisi 15 bola-bola penggerus, kemudian metanol ditambahkan hingga semua bahan terendam. Setelah itu, proses pencampuran dan penghalusan dilakukan dengan *planetary ball-mill* dengan kecepatan 200 rpm selama 2 jam. Hasil proses *milling* tersebut dipisahkan dari metanol dengan dekantasi diikuti dengan penguapan pada suhu 100 °C hingga semua cairan metanol menguap. Hasil dari proses ini disebut prekursor.

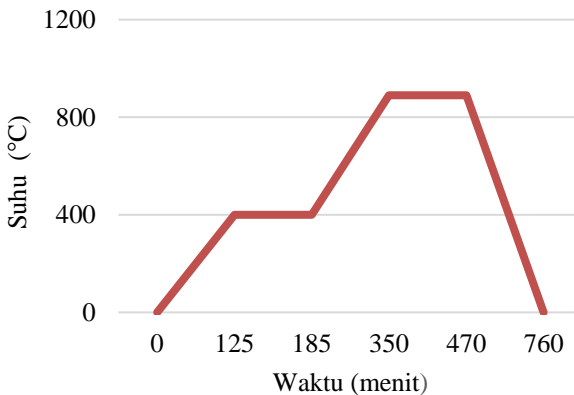
Tabel 3.1 Jumlah masa reaktan dalam sintesis 25 g oksida perovskit LSCF 7328, LSCF 6428, dan LSM 7310

Oksida Perovskit	Masa Reaktan (g)				
	$\text{La}_2\text{O}_3$	$\text{SrCO}_3$	$\text{Co}_3\text{O}_4$	$\text{Fe}_2\text{O}_3$	$\text{MnCO}_3$
LSCF 7328	12,5079	4,8570	1,7601	7,0025	-
LSCF 6428	10,9673	6,6348	1,8005	7,1634	-
LSM 7310	12,5869	4,8877	-	-	12,6939

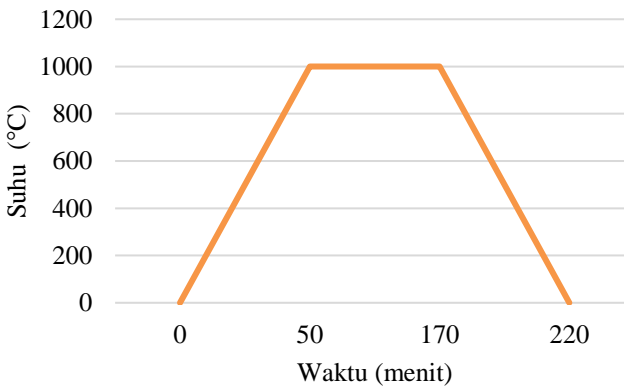
Prekursor yang terbentuk kemudian dikalsinasi dengan laju kenaikan suhu 3 °C/menit. Pada tahap pertama dilakukan penahanan pada suhu 400 °C selama 1 jam sebelum suhu dinaikkan kembali ke 890 °C dan ditahan pada suhu tersebut selama 2 jam. Program suhu pada proses kalsinasi adalah seperti pada Gambar 3.1.

Proses kalsinasi tersebut diulang sebanyak 2 kali dengan penggerusan selama 15 menit setiap proses kalsinasi selesai.

Setelah itu, serbuk disinter dengan laju kenaikan suhu  $20\text{ }^{\circ}\text{C}/\text{menit}$  dengan penahanan pada suhu  $1000\text{ }^{\circ}\text{C}$  selama 2 jam dengan program suhu *furnace* seperti pada Gambar 3.2. Serbuk yang dihasilkan kemudian digerus selama 15 menit dan disebut sebagai serbuk oksida perovskit. Serbuk tersebut kemudian dikarakterisasi dengan difraktometer sinar-X.



Gambar 3.1 Program suhu kalsinasi.



Gambar 3.2 Program suhu sintering.

Analisis difraksi sinar-X dilakukan di jurusan Material dan metalurgi ITS. Sampel yang berupa serbuk oksida perovskit LSCF 7328, 6428 dan LSM 7310 diletakkan pada sel difraksi (*sample holder*) kemudian diukur difraksi sinar-X pada rentang sudut  $2\theta$  antara  $5^\circ$  hingga  $85^\circ$ . Difraktogram yang terbentuk selanjutnya dicocokkan dengan data standar dari kartu PDF (*Powder Diffraction File*) yang dikeluarkan oleh JCPDS (*Join Committee on Powder Diffraction Standard*).

### 3.2.2 Pembuatan Membran Keramik Datar

Membran keramik datar yang dibuat pada penelitian ini merupakan membran lapis tunggal dan membran lapis ganda dengan metode *dry pressing*. Membran lapis tunggal berupa membran rapat simetris dengan bahan baku berupa satu jenis serbuk oksida perovskit. Sementara itu, membran lapis ganda merupakan membran yang terdiri atas lapisan dasar berupa membran rapat perovskit dan lapisan atas berupa lapisan cerium oksida ( $\text{CeO}_2$ ) atau campuran nikel dan cerium oksida ( $\text{NiO-CeO}_2$ ).

Bahan baku pembuatan kedua membran tersebut berupa serbuk oksida perovskit (LSCF 6428, LCF 7328 dan LSM 7310), serbuk NiO dan serbuk  $\text{CeO}_2$ . Sebelum dibuat membran mentah, semua serbuk tersebut terlebih dahulu diayak dengan ayakan 400 mesh. Khusus campuran  $\text{NiO-CeO}_2$  dibuat dengan pencampuran serbuk NiO sebanyak 5 g dan serbuk  $\text{CeO}_2$  sebanyak 5 g ke dalam mortar, kemudian campuran serbuk tersebut digerus selama 15 menit.

Pada proses pembuatan membran lapis tunggal, serbuk yang telah lolos ayakan 400 mesh ditimbang sebanyak 0,93 g agar terbentuk membran mentah dengan ukuran tebal 2 mm dan diameter 13 mm. Setelah itu, serbuk dimasukkan ke dalam cetakan kemudian ditekan dengan penekanan sebesar 8 ton selama 15 menit. Membran mentah yang telah terbentuk kemudian diukur diameter dan ketebalannya dengan jangka sorong. Selanjutnya, membran mentah disinter pada suhu  $1250^\circ\text{C}$  dan ditahan selama 2 jam dengan laju kenaikan suhu  $3^\circ\text{C}/\text{menit}$ .



Ada tiga proses pembuatan membran lapis ganda yang dibedakan berdasarkan jenis membran yang dibentuk, yaitu membran perovskit terlapis campuran NiO dan CeO<sub>2</sub> (NiO-CeO<sub>2</sub>) atau CeO<sub>2</sub>, membran perovskit terlapis campuran perovskit dan NiO-CeO<sub>2</sub> atau perovskit dan CeO<sub>2</sub>, serta membran perovskit terlapis NiO-CeO<sub>2</sub> atau CeO<sub>2</sub> dengan agen perekat.

### **3.2.2.1 Membran lapis ganda NiO-CeO<sub>2</sub>/perovskit dan CeO<sub>2</sub>/perovskit**

Membran NiO-CeO<sub>2</sub>/perovskit atau CeO<sub>2</sub>/perovskit merupakan membran lapis ganda yang terdiri atas lapisan dasar perovskit dengan lapisan atas berupa NiO-CeO<sub>2</sub> atau CeO<sub>2</sub>. Serbuk oksida perovskit (LSCF 6428, LSCF 7328, atau LSM 7310) yang dibutuhkan sebesar 0,657 g, CeO<sub>2</sub> sebesar 0,279 g, serta campuran NiO-CeO<sub>2</sub> dengan massa NiO dan CeO<sub>2</sub> masing-masing sebesar 0,139 g.

Serbuk perovskit yang telah ditimbang kemudian dimasukkan ke dalam cetakan dan diratakan permukaan serbuk dalam cetakan. Setelah itu, cetakan diberi tekanan dengan pompa hidraulik sebesar 4 ton dan ditahan selama 15 menit. Selanjutnya, serbuk NiO-CeO<sub>2</sub> atau CeO<sub>2</sub> dimasukkan dalam cetakan dan diratakan. Cetakan yang telah berisi lapisan perovskit dan lapisan oksida logam tersebut kemudian ditekan dengan tekanan sebesar 8 ton dengan penahanan selama 15 menit. Membran mentah yang dihasilkan kemudian diukur diameter dan tebalnya dengan jangka sorong. Setelah itu, membran mentah disinter pada suhu 1250 °C selama 2 jam dengan laju kenaikan suhu 3 °C/menit.

### **3.2.2.2 Membran lapis ganda perovskit-NiO-CeO<sub>2</sub>/perovskit dan perovskit-CeO<sub>2</sub>/perovskit**

Membran perovskit terlapis campuran perovskit dan oksida logam dibuat dengan tahapan yang sama dengan membran perovskit terlapis NiO-CeO<sub>2</sub> atau CeO<sub>2</sub>. Perbedaan dari kedua membran tersebut adalah pada bahan baku lapisan atasnya yang terdiri dari campuran serbuk oksida perovskit dan serbuk oksida

logam dengan perbandingan 1:1, yaitu serbuk oksida perovskit (LSCF 6428, LSCF 7328, dan LSM 7310) sebesar 0,139 g dan serbuk campuran NiO-CeO<sub>2</sub> sebesar 0,139 g. Begitu pula untuk campuran perovskit dengan CeO<sub>2</sub>, masa perovskit yang digunakan sebesar 0,139 g dan CeO<sub>2</sub> sebesar 0,139 g.

Membran mentah ini dicetak dengan metode *dry pressing*. Tahap awal pencetakan, bahan baku lapisan dasar dan lapisan atas ditimbang dengan massa berurutan sebesar 0,657 g dan 0,297 g. Setelah itu, bahan baku lapisan dasar (serbuk oksida perovskit) dimasukkan ke dalam cetakan dan ditekan secara manual dan diratakan permukaan serbuknya. Setelah itu, cetakan dibuka dan bahan baku lapisan atas dimasukkan ke dalam cetakan dan permukaan serbuk dalam cetakan kembali diratakan. Selanjutnya, cetakan ditekan dengan tekanan 6 ton selama 15 menit. Membran yang dihasilkan merupakan membran mentah. Membran tersebut kemudian diukur tebal dan diameternya dengan jangka sorong. Selanjutnya, membran mentah disinter pada suhu 1250 °C selama 2 jam dengan laju kenaikan suhu 3 °C/menit.

### **3.2.2.3 Membran lapis ganda NiO-CeO<sub>2</sub>/perovskit dan CeO<sub>2</sub>/perovskit dengan penambahan agen perekat**

Perbedaan membran lapis ganda ini dengan membran perovskit terlapis NiO-CeO<sub>2</sub> atau CeO<sub>2</sub> yang telah dijelaskan sebelumnya adalah proses pembuatan membran lapis ganda yang dilakukan tidak dengan metode *dry pressing*. Membran lapis ganda ini dibuat dengan metode pelapisan (*coating*) pada lapisan dasar yang berupa membran keramik oksida perovskit.

Bahan baku lapisan atas terdiri atas campuran serbuk oksida logam (NiO-CeO<sub>2</sub> atau CeO<sub>2</sub> murni) dan agen perekat berupa amilum/pati. Campuran amilum dibuat dari amilum sebanyak 0,5 g kemudian ditambahkan dengan 2 mL aqua DM dan diaduk hingga rata. Setelah itu, ditambahkan 3 mL aqua DM yang telah mendidih. Selanjutnya, sisa-sisa amilum yang belum larut dicuci dengan 1 mL aqua DM, kemudian larutan diaduk hingga campuran homogen. NiO-CeO<sub>2</sub> atau CeO<sub>2</sub> sebanyak 1 g dimasukkan ke

dalam campuran agen perekat dan diaduk hingga homogen. Campuran tersebut diaduk di atas *hot plate* hingga suspensi terbentuk. Suspensi tersebut dioleskan ke atas permukaan membran keramik perovskit hingga terbentuk lapisan tipis yang rata. Proses pembentukan membran perovskit sama seperti proses pembuatan membran lapis tunggal. Setelah itu, membran didiamkan beberapa saat hingga suspensi lapisan atas mengering. Selanjutnya, amilum yang terkandung pada lapisan atas membran dihilangkan dengan pemanasan pada suhu 800 °C selama 3 jam dengan laju kenaikan suhu sebesar 2 °C/menit. Membran lapis ganda yang telah terbentuk kemudian dianalisis penampang lintangnya dengan *Scanning Electron Microscopy-Energy Dispersive X-Ray (SEM-EDX)*.

### **3.2.3 Uji Membran Keramik**

#### **3.2.3.1 Uji dan Karakterisasi Kerapatan Membran**

Membran lapis tunggal yang telah disinter diuji kerapatannya dengan uji tetes air. Pada uji tetes air, air diteteskan pada permukaan membran. Air yang telah diteteskan tersebut kemudian didiamkan selama 15 menit. Air yang meresap ke dalam membran mengindikasikan bahwa membran belum rapat karena masih adanya pori-pori pada membran tersebut, sehingga masih diperlukan sintering lebih lanjut.

Selain itu, kerapatan membran juga dianalisis dengan karakterisasi morfologi penampang lintang membran. Karakterisasi dilakukan dengan *Scanning Electron Microscopy (SEM)* untuk membran keramik lapis tunggal dan *Scanning Electron Microscopy (SEM)-Energy Dispersive X-Ray (EDX)* untuk membran keramik lapis ganda yang dilakukan di Laboratorium Energi dan Lingkungan ITS. Analisis permukaan penampang lintang membran dilakukan pada beberapa daerah fokus antar lapisan membran. Data morfologi perovskit diperoleh dari sinyal elektron sekunder dengan laju elektron 20 kV. Selain itu, pada membran lapis ganda dilakukan analisis sebaran atau

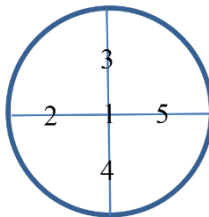
perpindahan unsur di daerah perbatasan antar dua lapisan membran dengan pemetaan *Energy Dispersive X-Ray (EDX)*.

### 3.2.3.2 Uji Koefisien Muai Panas Membran

Uji koefisien muai panas dilakukan dengan analisis termomekanik (TMA/SDTA 840 METLER TOLEDO) di Laboratorium Energi dan Lingkungan LPPM ITS, Surabaya pada masing-masing membran lapis tunggal (LSCF 6428, LSCF 7328, LSM 7310,  $\text{CeO}_2$  dan  $\text{NiO-CeO}_2$ ). Membran yang diuji harus memiliki permukaan yang rata. Membran diuji dengan laju pemanasan  $5\text{ }^\circ\text{C}/\text{menit}$  pada rentang suhu  $400\text{--}1000\text{ }^\circ\text{C}$  di udara. Koefisien muai panas diperoleh dari *slope* perbandingan pertambahan panjang membran dengan kenaikan suhu.

### 3.2.3.3 Uji Kekerasan Membran

Uji kekerasan membran dilakukan dengan *Micro Vickers Hardness* dengan sudut indentasi sebesar  $136^\circ$ . Indentasi dilakukan dengan gaya  $0,5\text{ kgf}$  dan dipertahankan selama 10 detik pada 5 titik permukaan membran, terlihat pada Gambar 3.3. Nilai kekerasan diperoleh dari fungsi gaya yang diberikan dibagi dengan luas permukaan inden.



Gambar 3.3 Titik-titik indentasi uji kekerasan membran.

## BAB IV

### HASIL DAN PEMBAHASAN

Pembahasan pada penelitian ini meliputi sintesis oksida perovskit  $\text{La}_{0,6}\text{Sr}_{0,4}\text{Co}_{0,2}\text{Fe}_{0,8}\text{O}_{3-\delta}$  (LSCF 6428),  $\text{La}_{0,7}\text{Sr}_{0,3}\text{Co}_{0,2}\text{Fe}_{0,8}\text{O}_{3-\delta}$  (LSCF 7328),  $\text{La}_{0,7}\text{Sr}_{0,3}\text{MnO}_{3-\delta}$  (LSM 7310) dan preparasi katalis  $\text{NiO-CeO}_2$ , pembuatan membran lapis tunggal perovskit,  $\text{CeO}_2$  dan  $\text{NiO-CeO}_2$ , pembuatan membran lapis ganda  $\text{CeO}_2$ /perovskit dan  $\text{NiO-CeO}_2$ /perovskit, uji kompatibilitas membran lapis ganda dan uji kekerasan membran perovskit.

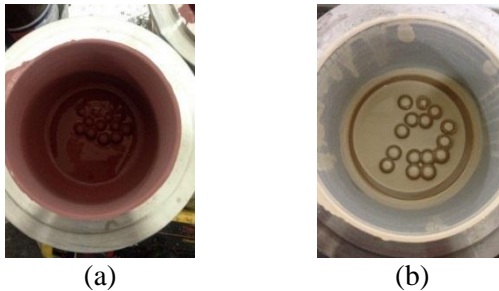
#### 4.1 LSCF 6428, LSCF 7328, LSM 7310 dan campuran $\text{NiO-CeO}_2$

Oksida perovskit  $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{Co}_{0,2}\text{Fe}_{0,8}\text{O}_{3-\delta}$  ( $x = 0,3$  dan  $0,4$ ) dan  $\text{La}_{0,7}\text{Sr}_{0,3}\text{MnO}_{3-\delta}$  dibuat dengan metode *solid state* sesuai dengan penelitian yang dilakukan oleh Nurherdiana dkk. (2017). Metode *solid state* dipilih karena *yield* produk yang dihasilkan lebih banyak dibandingkan dengan metode lainnya dan paling mendekati komposisi produk yang diinginkan. Selain itu, tidak ada komposisi material pembentuk perovskit yang berkurang karena proses penguapan atau pengendapan (Maulidah dkk., 2010). Menurut penelitian yang telah dilakukan oleh Fauzinudin (2012), padatan yang direaksikan dalam metode *solid-state* harus dalam kemurnian tinggi. Oleh sebab itu, bahan oksida logam dan logam karbonat yang digunakan memiliki kemurnian tinggi, seperti  $\text{La}_2\text{O}_3$  (99,5%) berupa bubuk halus berwarna putih,  $\text{SrCO}_3$  (99,9%) berupa serbuk berwarna putih,  $\text{Co}_3\text{O}_4$  (99,5%) berupa bubuk berwarna hitam,  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  (97%) berupa serbuk berwarna merah bata, dan  $\text{MnCO}_3$  (99,9%) berupa serbuk berwarna coklat muda. Sebelum digunakan sebagai reaktan, bahan-bahan tersebut dipanaskan terlebih dahulu pada suhu  $105^\circ\text{C}$ . Fungsi pemanasan bertujuan untuk menghilangkan kandungan air dari udara yang terserap oleh bahan-bahan tersebut, sehingga massa reaktan yang ditimbang mendekati massa reaktan yang diinginkan. Massa bahan-bahan

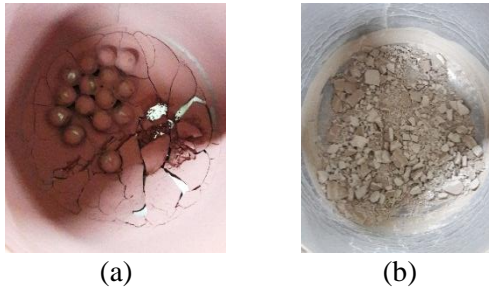
reaktan ditimbang sesuai dengan jumlah stoikiometri yang terangkum pada Tabel 3.1. Setelah itu, proses sintesis dengan *planetary ball mill* dapat dilakukan.

Semua bahan tersebut dimasukkan ke dalam wadah *ball mill* dan ditambahkan metanol secukupnya. Penambahan metanol berperan sebagai agen pendispersi yang dapat menghambat terjadinya penggumpalan saat proses sintesis berlangsung. Setelah itu, wadah *ball mill* diletakkan di atas poros pemutar dan alat *planetary ball mill* diatur. Proses penggilingan dengan *planetary ball mill* berlangsung selama 2 jam dengan kecepatan 200 rpm.

Produk yang dihasilkan dari proses penggerusan dengan *planetary ball mill* berupa campuran seperti lumpur yang berwarna merah bata untuk perovskit LSCF 6428 dan LSCF 7328, sedangkan LSM 7310 berwarna coklat muda dan memiliki tekstur yang sama dengan LSCF (terlihat pada Gambar 4.1). Setelah itu, dilakukan penguapan metanol pada suhu 100 °C selama beberapa saat. Produk sintesis setelah diuapkan berupa serbuk kering berwarna merah bata (LSCF 6428 dan LSCF 7328) dan coklat muda (LSM 7310) seperti terlihat pada Gambar 4.2. Serbuk tersebut kemudian digerus kembali dengan mortar agar serbuk menjadi lebih homogen dan tidak teraglomerasi.



Gambar 4.1 Campuran hasil penggerusan dengan *planetary ball mill*: (a) LSCF dan (b) LSM.



Gambar 4.2 Campuran (a) LSCF dan (b) LSM yang telah diuapkan

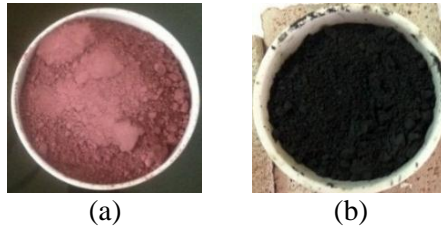
Serbuk campuran hasil *ball milling* memiliki warna sesuai dengan bahan bakunya. Warna serbuk yang mengandung besi (yang dibuat dengan komposisi LSCF) didominasi oleh warna merah bata dari oksida besi, sedangkan oksida yang dibuat dengan komposisi LSM berwarna abu-abu sesuai dengan campuran warna bahan bakunya. Tidak adanya perubahan warna mengindikasikan bahwa proses *ball milling* yang dilakukan belum cukup untuk mengubah campuran oksida logam menjadi oksida perovskit.

Campuran yang dihasilkan di atas kemudian dikalsinasi agar oksida perovskit terbentuk. Kalsinasi serbuk hasil *ball milling* dilakukan secara bertahap. Tahap pertama dilakukan pada suhu 400 °C selama 1 jam dilanjutkan dengan kalsinasi pada suhu 890 °C selama 2 jam. Pemilihan suhu kalsinasi berdasarkan analisis DTA-TGA yang telah dilakukan oleh Maulidah (2010). Pada penelitian tersebut diketahui bahwa pada suhu sekitar 480-540 °C terjadi dekomposisi karbonat logam menjadi oksida logam dan pada suhu sekitar 880 °C terjadi pembentukan oksida perovskit. Laju kenaikan suhu sebesar 3 °C/menit dilakukan agar kenaikan suhu dapat terjadi secara seragam di semua bagian campuran serbuk sehingga reaksi dapat berjalan secara homogen.

Kalsinasi sampai suhu 880 °C dilakukan sebanyak dua kali. Pada setiap kali kalsinasi, suhu furnace dibiarkan agar kembali ke suhu ruang kemudian serbuk campuran digerus ulang. Penggerusan dilakukan untuk memperbesar luas permukaan kontak antar partikel dan membentuk bidang kontak untuk reaksi

yang baru. Bidang kontak baru menjadi tempat bagi ion-ion dari bahan baku yang belum bereaksi untuk bereaksi membentuk oksida perovskit.

Serbuk yang telah dilakukan dikalsinasi kemudian digerus dan disinter pada suhu 1000 °C selama 2 jam dengan laju kenaikan suhu 20 °C/menit. Sintering dilakukan untuk mengoptimalkan laju pembentukan perovskit dan meningkatkan kristalinitasnya. Produk hasil sintering berupa serbuk berwarna hitam pekat. Perubahan warna serbuk setelah kalsinasi dan sintering dapat dilihat pada Gambar 4.3 dan 4.4. Perubahan warna ini mengindikasikan bahwa telah terjadi reaksi antara oksida-oksida logam pada bahan baku membentuk fasa baru yang diperkirakan merupakan oksida perovskit. Perubahan warna dari prekursor berwarna merah bata menjadi hitam pekat tersebut sesuai dengan penelitian yang dilaporkan oleh Maulidah (2010).



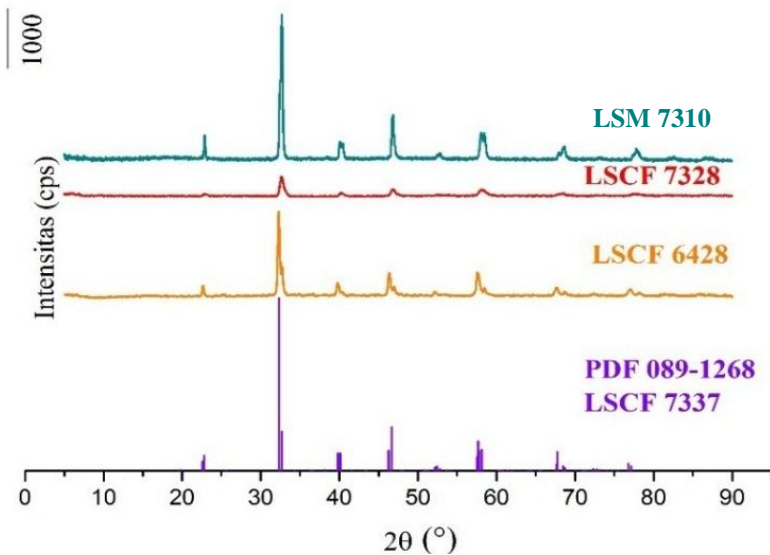
Gambar 4.3 Perubahan warna serbuk campuran LSCF: (a) sebelum dan (b) sesudah kalsinasi-sintering.



Gambar 4.4 Perubahan warna serbuk campuran LSM: (a) sebelum dan (b) sesudah kalsinasi-sintering.



Serbuk hasil kalsinasi kemudian dikarakterisasi dengan metode difraksi sinar-X agar dapat diketahui fasa kristalnya. Difraktogram perovskit LSCF 6428, LSCF 7328 dan LSM 7310 yang diperoleh kemudian dicocokkan dengan difraktogram oksida perovskit LSCF 7337 yang diperoleh dari data JCPDS (*Joint Committe on Powder Diffraction Standar*) No. 089-1268. Hasil perbandingan difraktogram hasil sintesis dengan data base ditunjukkan pada Gambar 4.5.

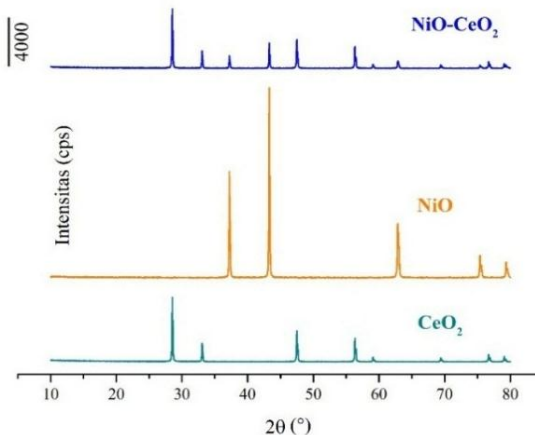


Gambar 4.5 Difraktogram LSCF 6428, LSCF 7328, dan LSM 7310 hasil sintesis, serta LSCF 7337 standar.

Difraktogram LSCF 6428, LSCF 7328, dan LSM 7310 hasil sintesis menunjukkan puncak-puncak yang sesuai dengan difraktogram oksida perovskit LSCF 7337 yang digunakan sebagai standar. Berdasarkan hal tersebut dapat disimpulkan bahwa LSCF 6428, LSCF 7328 dan LSM 7310 mempunyai struktur yang sama dengan oksida perovskit LSCF 7337. Oleh karena itu dapat disimpulkan bahwa LSCF 6428, LSCF 7328 dan LSM 7310 adalah

oksida perovskit dengan struktur kristal yang serupa dengan oksida perovskit LSCF 7337 dan telah berhasil terbentuk dengan kemurnian dan kristalinitas yang tinggi yang ditunjukkan dengan intensitas puncak yang tinggi dan tidak ditemukannya puncak-puncak lain selain puncak oksida perovskit. Oleh karena itu dapat disimpulkan bahwa LSCF 6428, LSCF 7328 dan LSM 7310 adalah oksida perovskit dengan struktur kristal yang serupa dengan oksida perovskit LSCF 7337.

Campuran NiO dan  $\text{CeO}_2$  (perbandingan 1:1) dianalisis pula dengan metode difraksi sinar-X. Difraktogram hasil dapat dilihat pada Gambar 4.6. Pada gambar tersebut terlihat bahwa difraktogram sinar-X campuran NiO- $\text{CeO}_2$  merupakan gabungan difraktogram NiO dengan puncak-puncak khas pada  $2\theta = 37,23^\circ$ ;  $43,28^\circ$ ;  $62,83^\circ$ ;  $75,38^\circ$ ;  $79,36^\circ$  dan difraktogram  $\text{CeO}_2$  dengan puncak-puncak khas pada  $2\theta = 28,54^\circ$ ;  $33,08^\circ$ ;  $47,49^\circ$ ;  $56,35^\circ$ ;  $59,09^\circ$ ;  $69,42^\circ$ ;  $76,70^\circ$ ;  $79,07^\circ$ . Difraktogram sinar-X campuran NiO- $\text{CeO}_2$  menunjukkan bahwa tidak ada puncak lain selain puncak-puncak difraksi NiO dan  $\text{CeO}_2$  sehingga diketahui bahwa pencampuran NiO dan  $\text{CeO}_2$  tidak membentuk persenyawaan baru.



Gambar 4.6 Difraktogram NiO,  $\text{CeO}_2$ , dan campuran NiO dan  $\text{CeO}_2$

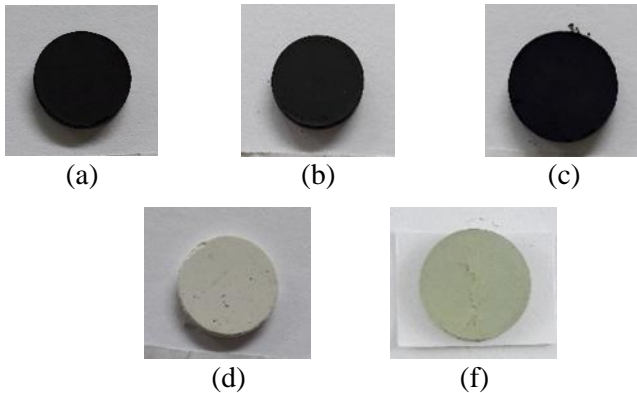
## 4.2 Pembuatan Membran

Pada penelitian ini, ada dua jenis membran keramik datar yang dibuat yaitu membran lapis tunggal dan membran lapis ganda. Membran lapis tunggal merupakan membran rapat yang hanya terdiri atas satu lapisan oksida perovskit, katalis  $\text{CeO}_2$  atau  $\text{NiO-CeO}_2$  saja. Membran lapis ganda merupakan membran yang terdiri dari dua lapisan yang berbeda yaitu lapisan dasar oksida perovskit dan lapisan katalis  $\text{CeO}_2$  atau  $\text{NiO-CeO}_2$ . Perbandingan ketebalan lapisan dasar dan katalis adalah sekitar 7:3. Lapisan dasar yang rapat dan tebal memiliki fungsi sebagai membran penghantar ion oksigen sekaligus pendukung katalis sehingga membran harus rapat dan lebih tebal, sedangkan lapisan katalis tidak harus rapat dan tidak tebal.

### 4.2.1 Membran Lapis Tunggal Oksida Perovskit, $\text{CeO}_2$ dan Campuran $\text{NiO-CeO}_2$ .

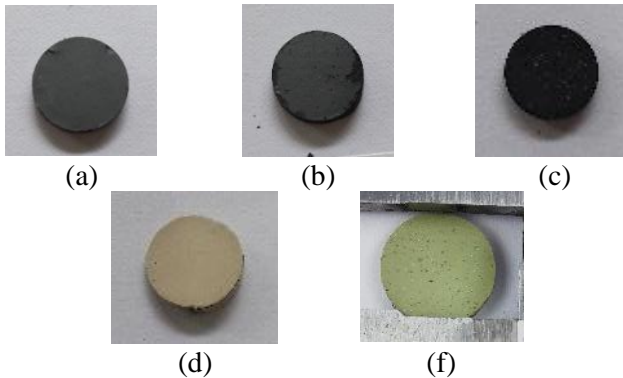
Bahan baku pembentuk membran mentah adalah serbuk oksida perovskit, serbuk  $\text{CeO}_2$  dan  $\text{NiO-CeO}_2$ . Semua serbuk tersebut diayak terlebih dahulu dengan ayakan 400 mesh agar diperoleh ukuran partikel yang seragam dan halus. Semakin kecil ukuran partikelnya, semakin mudah sintering terjadi dan semakin rapat membran yang dihasilkan. Pembuatan membran ini dilakukan sesuai dengan metode yang dilaporkan oleh Wulandari (2012) dan Utomo (2014). Membran mentah (membran hasil pencetakan) yang telah terbentuk kemudian diukur diameter, ketebalan dan volumenya dengan jangka sorong. Membran mentah yang telah dicetak dapat dilihat pada Gambar 4.7.

Membran mentah masih sangat mudah pecah sehingga perlu disinter agar diperoleh membran yang lebih kuat dan rapat. Proses sintering membran mentah dilakukan pada suhu  $1250\text{ }^\circ\text{C}$  selama 2 jam. Pemilihan suhu sintering berdasarkan pada penelitian yang telah dilakukan oleh Möbius dkk. (2009). Proses sintering dilakukan secara perlahan dengan laju kenaikan suhu sebesar  $3\text{ }^\circ\text{C}/\text{menit}$  agar membran tidak pecah saat disinter.



Gambar 4.7 Membran mentah lapis tunggal sebelum disinter: (a) LSCF 7328, (b) LSM 7310, (c) LSCF 6428, (d)  $\text{CeO}_2$  dan (e)  $\text{NiO-CeO}_2$

Pada membran lapis tunggal, membran yang dihasilkan terlihat lebih kuat dan mengalami perubahan warna, seperti yang terlihat pada Gambar 4.8. Selain itu, sintering menyebabkan ukuran membran tunggal perovskit mengalami penyusutan, sedangkan membran  $\text{CeO}_2$  dan campuran  $\text{NiO-CeO}_2$  terlihat tidak mengalami penyusutan yang berarti. Besar penyusutan membran tersebut dapat dilihat dari perubahan diameter dan ketebalan membran sesudah dan sebelum sintering yang dirangkum pada Tabel 4.1. Dari data tersebut terlihat bahwa seluruh membran mengalami penyusutan, namun membran perovskit menunjukkan volume penyusutan yang lebih besar dibandingkan  $\text{CeO}_2$  dan campuran  $\text{NiO-CeO}_2$ . Penyusutan volume membran terbesar terjadi pada membran perovskit LSM 7310, yaitu sebesar 42,74% dan terendah adalah membran campuran  $\text{NiO-CeO}_2$  yaitu sebesar 28,45%. Menurut Wulandari (2012), adanya penyusutan menunjukkan peningkatan kerapatan membran perovskit. Hal ini dikarenakan partikel-partikel penyusun membran bergabung dan mengisi ruang kosong antar partikel saat proses sintering berlangsung sehingga terjadi penyusutan volume dan peningkatan kerapatan membran (Wulandari, 2012).



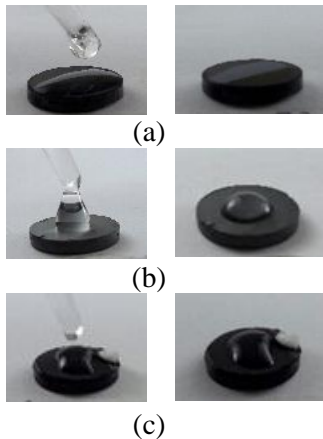
Gambar 4.8 Membran lapis tunggal setelah disinter (a) LSCF 7328, (b) LSM 7310, (c) LSCF 6428, (d)  $\text{CeO}_2$  dan (e)  $\text{NiO-CeO}_2$ .

Tabel 4.1 Data ukuran membran sebelum dan setelah sintering

Nama Membran		LSCF 6428	LSCF 7328	LSM 73	$\text{CeO}_2$	$\text{NiO-}$ $\text{CeO}_2$
Diameter (cm)	Sebelum	1,29	1,30	1,27	1,29	1,29
	Setelah	1,10	1,10	1,10	1,20	1,26
Ketebalan (cm)	Sebelum	0,20	0,20	0,22	0,20	0,20
	Setelah	0,17	0,17	0,16	0,15	0,15
Volume ( $\text{cm}^3$ )	Sebelum	0,26	0,27	0,25	0,26	0,26
	Setelah	0,16	0,16	0,15	0,17	0,19
Susut Bakar (%)		38,19	39,14	42,74	35,10	28,45

Pengujian kerapatan dilakukan dengan uji tetesan air. Uji tetes air merupakan uji fisik kerapatan membran yang didasarkan pada prinsip kapilaritas zat cair. Membran yang dapat menyerap air menunjukkan bahwa membran tersebut kurang rapat karena molekul air masih dapat lolos pada celah-celah permukaan membran. Proses uji kerapatan membran dengan air dapat dilihat pada Gambar 4.9. Dari gambar tersebut terlihat bahwa air yang telah ditetaskan pada membran tertahan pada permukaan membran dan tidak terserap ke dalam membran. Hal ini menunjukkan bahwa

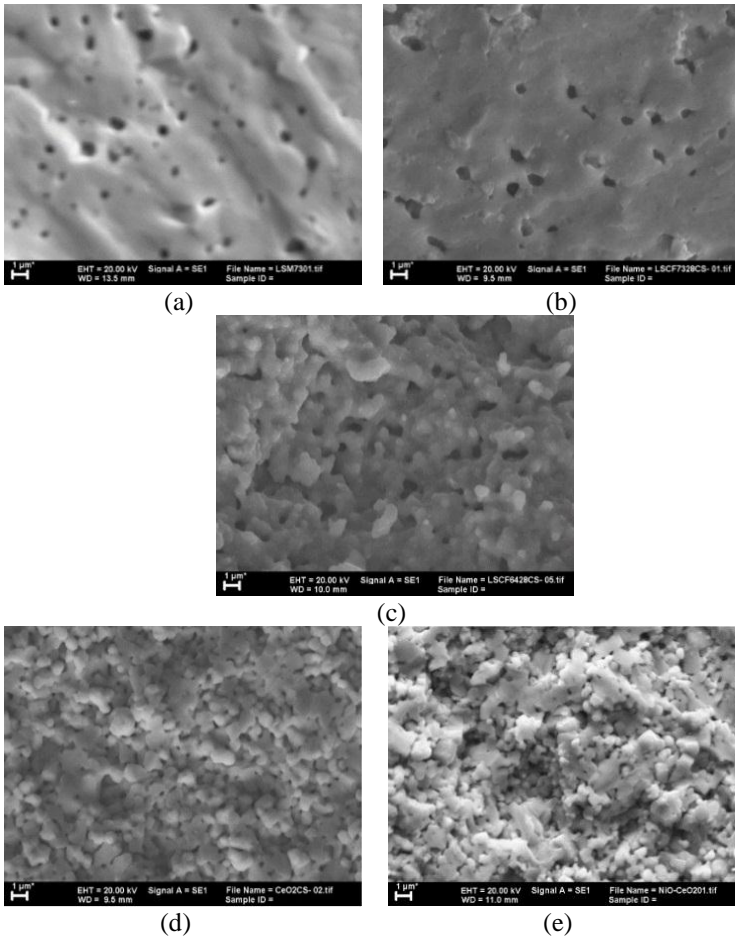
ketiga membran tersebut telah mencapai kerapatan yang diharapkan.



Gambar 4.9 Uji Tetes air pada permukaan membran perovskit: (a) LSCF 7328, (b) LSCF 6428 dan (c) LSM 7310

Kerapatan masing-masing membran perovskit kemudian didukung dengan hasil pengamatan morfologi penampang lintang membran, seperti yang terlihat pada Gambar 4.10. Hasil ini menunjukkan bahwa ketiga membran perovskit tersebut terlihat sudah rapat sehingga dapat dipastikan bahwa permukaan dan bagian dalam membran perovskit telah rapat. Kerapatan membran ditandai dengan terbentuknya daerah tidak berongga dari proses penggabungan partikel-partikel selama proses sintering berlangsung (Utomo, 2014). Pada pengamatan terlihat bahwa membran LSM 7310 memiliki kerapatan tertinggi, kemudian diikuti oleh LSCF 7328 dan LSCF 6428. Hasil tersebut sesuai dengan penelitian Marinsek dkk (2009) yang menunjukkan bahwa LSM telah mencapai densifikasi diatas 92% pada suhu sintering 1090 °C, sehingga penyusutan LSM lebih tinggi dibandingkan LSCF. Sementara itu, kerapatan LSCF 7328 yang lebih besar dibandingkan LSCF 6428 tidak sesuai dengan penelitian

Aliyatulmuna (2017) dan Möbius dkk. (2009) yang mengatakan bahwa semakin rendah kandungan lantanum maka semakin tinggi kerapatan membran. Hal ini dikarenakan proses pencetakan membran LSCF 6428 yang kurang tepat sehingga dihasilkan membran yang belum rapat.



Gambar 4.10 Mikrograf membran: (a) LSM 7310, (b) LSCF 7328, (c) LSCF 6428, (d), CeO<sub>2</sub> dan (e) NiO-CeO<sub>2</sub>

Berbeda dengan membran perovskit, foto SEM penampang lintang menunjukkan bahwa membran  $\text{CeO}_2$  dan  $\text{NiO-CeO}_2$  terlihat tidak tersinter secara sempurna pada suhu  $1250^\circ\text{C}$ . Rongga antar partikel masih banyak terlihat dan bentuk partikel penyusun membran dapat terlihat dengan jelas. Hal ini dikarenakan suhu sintering  $\text{NiO}$  berkisar pada suhu  $1400^\circ\text{C}$ , sedangkan sintering  $\text{CeO}_2$  mencapai suhu  $1600^\circ\text{C}$  (Batista dkk., 2011; Lipińska-Chwalek dkk., 2014). Sintering membran  $\text{NiO}$  dan  $\text{CeO}_2$  pada penelitian ini tidak dilakukan pada suhu di atas  $1250^\circ\text{C}$  karena membran ini dirancang untuk digunakan sebagai pelapis membran LSCF 6428, LSCF 7328 dan LSM 73 yang mulai meleleh pada suhu di atas  $1250^\circ\text{C}$ .

Pengukuran volume penyusutan, uji tetesan air dan pengamatan penampang lintang membran dengan instrumen SEM membuktikan bahwa membran lapis tunggal perovskit merupakan membran rapat. Selanjutnya, membran perovskit rapat diuji sifat kekerasannya dengan metode *Vicker's Microhardness*. Pengujian dilakukan pada 5 titik indentasi dengan gaya tekan 0,5 kgf dan ditahan selama 10 detik. Hasil uji kekerasan membran dirangkum dalam Tabel 4.2. Dari hasil tersebut terlihat bahwa masing-masing membran memiliki nilai kekerasan yang bervariasi. Menurut Setiawati dkk. (2012), nilai kekerasan yang bervariasi dikarenakan densitas membran yang kurang homogen akibat proses pencetakan dengan pemberian tekanan secara searah saja sehingga kerapatan membran pada bagian tengah dan tepi berbeda.

Tabel 4.2 Kekerasan membran perovskit pada 5 titik yang berbeda

Titik Indentasi	Kekerasan (HV)		
	LSCF 6428	LSCF 7328	LSM 7310
1	691,0	1008	436,0
2	632,8	1020	399,0
3	653,6	1272	398,3
4	802,2	1457	430,4
5	875,0	1018	425,8
Rata-rata	730,9	1155	417,9

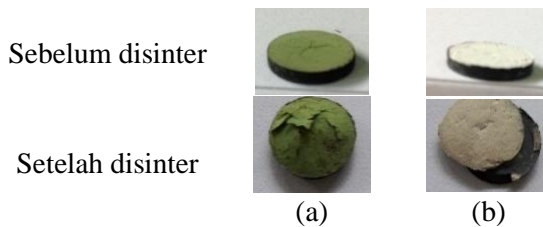


Hasil uji kekerasan menunjukkan bahwa membran perovskit lapis tunggal memiliki kekerasan yang tinggi yaitu dengan rentang 417,9 HV hingga 1155 HV yang diuji dengan beban gaya indenter sebesar 0,5 kgf. Dari ketiga perovskit tersebut, membran LSCF 7328 memiliki nilai kekerasan yang paling tinggi, sedangkan membran dengan nilai kekerasan terendah adalah LSM 7310. Umumnya kekerasan sebanding dengan kerapatan. Semakin rapat suatu bahan maka semakin keras bahan tersebut (Setiawati dkk., 2011), seperti membran LSCF 7328 yang lebih tingkat kekerasannya dari pada LSCF 6428 karena kerapatan dari membran LSCF 7328 lebih tinggi. Sementara itu, kekerasan membran LSM 7310 tidak sebanding dengan kerapatan karena membran LSM 7310 memiliki kerapatan yang lebih tinggi dibandingkan LSCF 7328 dan LSCF 6428, namun kekerasannya justru yang paling rendah. Kemungkinan, hal ini dikarenakan kondisi membran LSM 7310 yang digunakan dalam pengujian kekerasan telah mengalami sedikit keretakan. Hasil ini menunjukkan bahwa keberadaan retakan pada membran dapat menurunkan tingkat kekerasan dari membran tersebut.

#### **4.2.2 Membran Lapis Ganda $\text{CeO}_2$ /perovskit dan $\text{NiO-CeO}_2$ /perovskit**

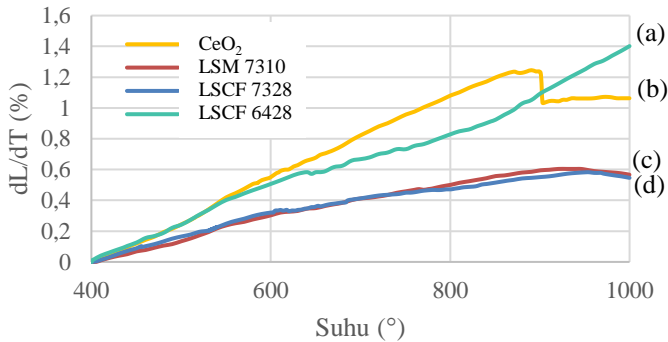
Membran lapis ganda yang terdiri atas lapisan dasar perovskit dan lapisan katalis ( $\text{CeO}_2$  atau  $\text{NiO-CeO}_2$ ) disiapkan dengan metode yang sama dengan membran lapis tunggal. Membran lapis ganda dibuat dengan pemberian tekanan *uniaxial* secara bertahap. Membran mentah yang dihasilkan kemudian disinter pada suhu 1250 °C selama 2 jam dengan laju kenaikan suhu 3 °C/menit. Pemilihan suhu sintering didasarkan pada penelitian Möbius dkk. (2009) dan Fansuri dkk. (2016). Gambar 4.11 menunjukkan bahwa membran lapis ganda hasil sintering mengalami delaminasi atau retak pada bagian antarmuka antara lapisan perovskit dan lapisan katalis ( $\text{NiO}$  dan  $\text{CeO}_2$ ). Akibat membran lapis ganda yang dihasilkan retak, maka pembuatan

membran NiO-CeO<sub>2</sub>/LSCF dan membran NiO-CeO<sub>2</sub>/LSM serta CeO<sub>2</sub>/LSM tidak dilanjutkan. Sridharan (2008) mengatakan bahwa delaminasi yang terjadi antara lapisan membran dihasilkan dari ketidakcocokan muai panas material. Ketidakcocokan sifat pemuaian dapat mengakibatkan bertambahnya tekanan saat terjadi perubahan suhu sehingga struktur akan semakin lemah dan rusak (Haines, 2002). Oleh karena itu, uji koefisien muai panas dari masing-masing membran perovskit dan NiO-CeO<sub>2</sub>, serta CeO<sub>2</sub> dilakukan.

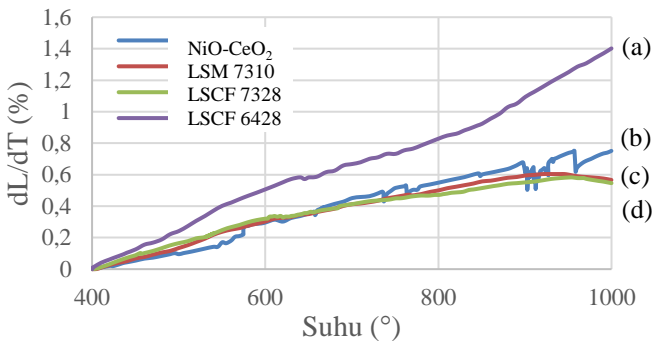


Gambar 4.11 Membran lapis ganda oksida perovskit/campuran: (a) oksida perovskit/NiO dan (b) oksida perovskit/CeO<sub>2</sub>.

Uji koefisien muai panas (*thermal expansion coefficient/TEC*) dengan *thermo-mechanic analyzer* (TMA) dilakukan pada membran lapis tunggal perovskit, CeO<sub>2</sub> dan NiO-CeO<sub>2</sub> pada rentang suhu 400-1000 °C. Pemilihan rentang suhu tersebut didasarkan pada suhu operasi reaksi oksidasi parsial metana. Kurva linear muai panas hasil dari uji TMA terlihat pada Gambar 4.12 dan 4.13. Berdasarkan pola kurva muai panas tersebut terlihat bahwa muai panas NiO-CeO<sub>2</sub> dan CeO<sub>2</sub> terhadap perovskit adalah sesuai pada suhu dibawah 500 °C. Namun, perbedaan muai panas antara perovskit dan CeO<sub>2</sub> mulai terlihat pada suhu diatas suhu 500 °C dengan peningkatan persentase muai panas yang besar.



Gambar 4.12 Kurva muai panas. (a) membran LSCF 6428, (b) membran  $\text{CeO}_2$ , (c) membran LSM 7310, (d) LSCF 7328



Gambar 4.13 Kurva muai panas. (a) membran LSCF 6428, (b) membran  $\text{NiO-CeO}_2$ , (c) membran LSM 7310, (d) LSCF 7328

Sementara itu, kurva linear muai panas  $\text{NiO-CeO}_2$  terlihat lebih rendah dibandingkan dengan kurva linear muai panas  $\text{CeO}_2$  (terlihat pada Gambar 4.13). Hasil ini menunjukkan bahwa pencampuran  $\text{NiO}$  pada  $\text{CeO}_2$  dapat menurunkan nilai koefisien muai panas  $\text{CeO}_2$  hingga hampir sesuai dengan pola muai panas perovskit LSCF 7328 dan LSM 7310. Namun, peningkatan kurva muai panas  $\text{NiO-CeO}_2$  terlihat sangat fluktuatif. Kemungkinan hal

tersebut dikarenakan NiO dan CeO<sub>2</sub> yang merupakan penyusun dari campuran NiO-CeO<sub>2</sub> masih mempertahankan struktur kristalnya masing-masing yang terlihat dari difraktogram campuran NiO-CeO<sub>2</sub> pada Gambar 4.6. Struktur kristal yang berbeda mengakibatkan proses pemuaihan tidak terjadi secara bersamaan.

Perbedaan pola kurva muai panas antara NiO-CeO<sub>2</sub> dan CeO<sub>2</sub> dengan perovskit LSCF 7328, LSCF 6428, dan LSM 7310 menunjukkan bahwa keretakan atau delaminasi yang terjadi pada proses pembuatan membran disebabkan oleh proses pemuaihan yang tidak terjadi secara bersamaan, seperti lapisan CeO<sub>2</sub> yang mengalami perekahan lebih besar daripada lapisan perovskit pada suhu diatas 500 °C. Selain itu, pola kurva muai panas perovskit dan CeO<sub>2</sub> serta NiO-CeO<sub>2</sub> menunjukkan bahwa kurva muai panas tidak linear atau terjadi perubahan kemiringan kurva pada rentang suhu tertentu. Secara umum, perubahan kemiringan kurva terjadi pada 13 rentang suhu yang terangkum dalam Tabel 4.3. Nilai koefisien muai panas masing-masing material juga dapat terlihat pada tabel tersebut.

Menurut Nityanand dkk. (2011), perubahan kemiringan terjadi karena hilangnya oksigen kisi dan pembentukan kekosongan oksigen yang terjadi secara bersamaan dengan reduksi kation situs B dari bilangan oksidasi tinggi ke rendah. Reduksi kation dapat mengakibatkan peningkatan jari-jari ionik, seperti peristiwa reduksi Co<sup>4+</sup> (0,530 Å ) menjadi Co<sup>3+</sup> (0,610 Å ) dan Fe<sup>4+</sup> (0,585 Å ) menjadi Fe<sup>3+</sup> (0,645 Å ) yang terjadi pada suhu 400 – 600 °C, Sedangkan reduksi Co<sup>3+</sup> (0,610 Å ) menjadi Co<sup>2+</sup> (0,745 Å ) pada rentang suhu 750 – 1000 °C (Fansuri dkk., 2017). Selain itu, dampak dari reduksi kation B adalah penurunan panjang ikatan B-O yang terjadi sesuai dengan aturan Pauling kedua, sehingga ukuran oktahedral BO<sub>6</sub> meningkat seiring dengan peningkatan muai kisi.

Tabel 4.3 Nilai Koefisien Muai Panas Membran perovskit,  $\text{CeO}_2$  dan  $\text{NiO-CeO}_2$ .

Rentang Suhu ( $^{\circ}\text{C}$ )	Koefisien Muai Panas ( $\text{ppm}/^{\circ}\text{C}$ )				
	LSCF 6428	LSCF 7328	LSM 7310	$\text{CeO}_2$	$\text{NiO-CeO}_2$
400-450	25,15	17,64	13,64	23,90	10,84
450-500	23,26	15,34	13,16	24,80	8,15
500-550	32,00	16,62	20,60	35,06	15,11
550-600	21,02	14,40	13,14	26,64	25,15
600-620	22,13	4,29	11,50	20,07	2,57
620-680	12,36	9,55	9,65	25,80	18,78
680-700	20,75	13,14	13,82	33,29	18,17
700-730	14,32	7,87	7,48	26,05	10,02
740-800	16,18	5,19	8,60	25,32	12,38
800-820	16,28	7,16	11,44	24,14	12,01
820-850	21,38	10,45	11,27	22,79	9,24
850-950	32,82	6,68	4,23	-13,67	13,72
950-1000	30,38	-7,34	-6,77	0,29	2,43
400-1000	22,16	9,31	10,14	21,11	12,20

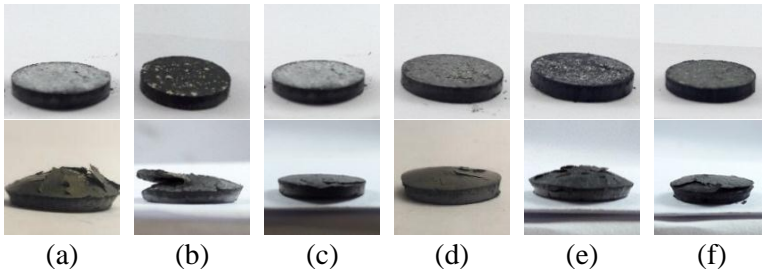
Selain itu, pada Tabel 4.3 menunjukkan adanya nilai koefisien muai panas yang menurun pada rentang suhu tertentu. Hal tersebut menunjukkan bahwa selama proses pemanasan telah terjadi proses perekahan dan penyusutan. Nilai koefisien muai panas dan kurva tersebut menunjukkan bahwa perovskit LSCF 6428 memiliki nilai koefisien panas tertinggi yang diikuti dengan LSM 7310 dan LSCF 7328. Urutan ini sesuai dengan pengamatan kerapatan pada penampang lintang membran tunggal perovskit dengan SEM (pada Gambar 4.10) menunjukkan bahwa perovskit LSCF 6428 lebih berpori dibandingkan perovskit LSCF 7328 dan LSM 7310 yang

memiliki kerapatan penampang lintang membran yang hampir sama. Begitu pula untuk membran  $\text{CeO}_2$  dengan morfologi penampang lintang yang berpori saat disinter pada suhu  $1250^\circ\text{C}$  memiliki nilai koefisien muai panas yang hampir sama dengan LSCF 6428. Namun, korelasi antara kerapatan dan koefisien muai panas tersebut tidak ditunjukkan oleh  $\text{NiO-CeO}_2$ . Nilai koefisien campuran oksida tersebut memiliki nilai yang lebih rendah daripada perovskit LSCF 6428 meskipun kerapatan perovskit LSCF 6428 lebih tinggi.

#### **4.2.3 Membran Lapis Ganda Perovskit- $\text{NiO-CeO}_2$ /Perovskit dan Perovskit- $\text{CeO}_2$ /Perovskit**

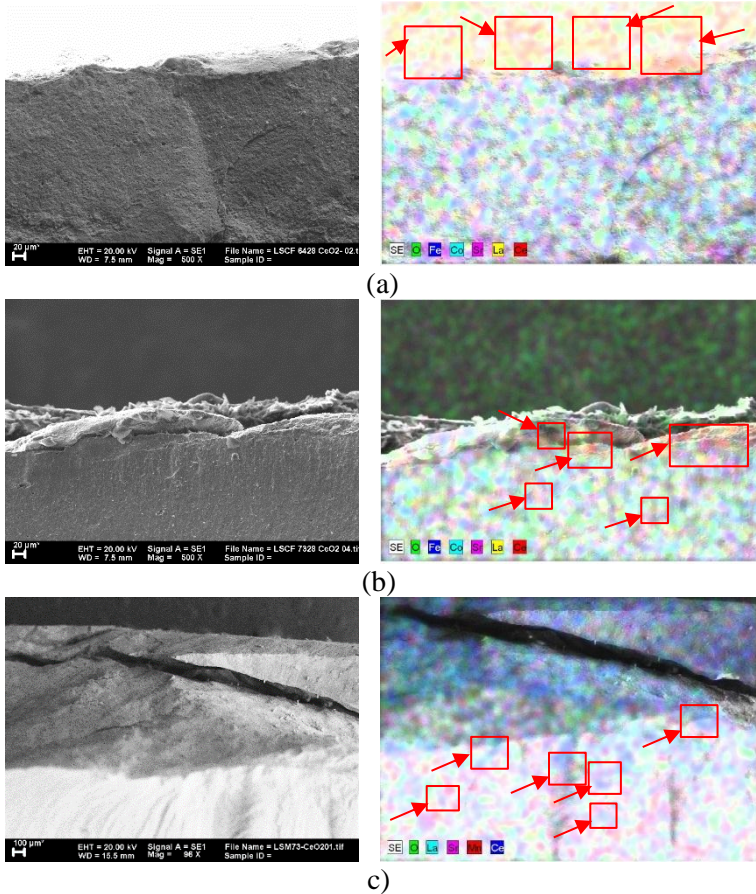
Metode pembuatan membran lapis ganda dimodifikasi agar dapat mengurangi terjadinya keretakan antar lapisan atas dan lapisan perovskit. Modifikasi dilakukan pada lapisan atas dengan cara pencampuran katalis ( $\text{NiO-CeO}_2$  dan  $\text{CeO}_2$ ) dengan perovskit yang sama. Penggunaan jenis perovskit yang sama pada lapisan katalis dilakukan agar perbedaan muai panas yang besar antara lapisan  $\text{NiO-CeO}_2$ ,  $\text{CeO}_2$  dan perovskit dapat berkurang. Perbandingan campuran antara perovskit dengan  $\text{NiO-CeO}_2$  dan  $\text{CeO}_2$  sebesar 1:1, sementara perbandingan antara lapisan atas dan lapisan dasar yang berupa perovskit adalah 7:3.

Membran lapis ganda sebelum (membran mentah) dan sesudah sintering terlihat pada Gambar 4.14. Gambar tersebut menunjukkan bahwa membran lapis ganda masih mengalami keretakan, walaupun tingkat keretakan antarmuka membran berkurang. Berkurangnya tingkat keretakan tersebut ditunjukkan oleh beberapa membran seperti LSCF 7328- $\text{CeO}_2$ / LSCF 7328 (Gambar 4.14 (c)) dan LSCF 7328- $\text{NiO-CeO}_2$ / LSCF 7328 (Gambar 4.14 (d)) yang menunjukkan . Keretakan/delaminasi yang masih terjadi menunjukkan bahwa pencampuran perovskit- $\text{CeO}_2$  atau perovskit- $\text{NiO-CeO}_2$  dengan perbandingan 1:1 belum dapat mengurangi perbedaan pemuaian yang cukup besar.



Gambar 4.14 Membran lapis ganda sebelum (atas) dan sesudah (bawah) sintering (a) LSCF 6428-CeO<sub>2</sub>/ LSCF 6428 (b) LSCF 6428-NiO-CeO<sub>2</sub>/ LSCF 6428 (c) LSCF 7328-CeO<sub>2</sub>/ LSCF 7328 (d) LSCF 7328-NiO-CeO<sub>2</sub>/ LSCF 7328 (e) LSM 7310-CeO<sub>2</sub>/ LSM 7310 (f) LSM 7310-NiO-CeO<sub>2</sub>/ LSM 7310.

Membran lapis ganda perovskit-NiO-CeO<sub>2</sub>/perovskit atau perovskit-CeO<sub>2</sub>/perovskit kemudian dianalisis sebaran unsur-unsur penyusunnya. Analisis ini bertujuan untuk mengetahui distribusi unsur-unsur Ce dan Ni pada lapisan perovskit. Hasil analisis sebaran unsur dengan SEM-EDX terlihat pada Gambar 4.15-4.16. Sebaran unsur-unsur penyusun perovskit dapat dilihat telah tersebar secara merata, baik pada membran perovskit-CeO<sub>2</sub>/perovskit maupun pada membran perovskit-NiO-CeO<sub>2</sub>/perovskit. Sementara untuk unsur penyusun katalis, yakni Ce atau Ni, sebagian besar sudah terdistribusi pada lapisan perovskit. Namun ada pula unsur Ce yang hanya tersebar pada lapisan atas (lapisan campuran CeO<sub>2</sub> dan perovskit), seperti yang terlihat pada membran LSCF 6428-CeO<sub>2</sub>/LSCF 6428 (Gambar 4.15 a) dimana unsur Ce yang berwarna merah terlihat tidak terdistribusi pada lapisan perovskit. Sementara itu unsur Ce pada membran LSCF 7328-CeO<sub>2</sub>/LSCF 7328 dan LSM 7310-CeO<sub>2</sub>/LSM 7310 yang berwarna merah dan biru secara berurutan terlihat pada Gambar 4.15 d dan c, sudah terdistribusi ke dalam lapisan perovskit. Distribusi unsur Ce ditandai dengan anak panah merah.

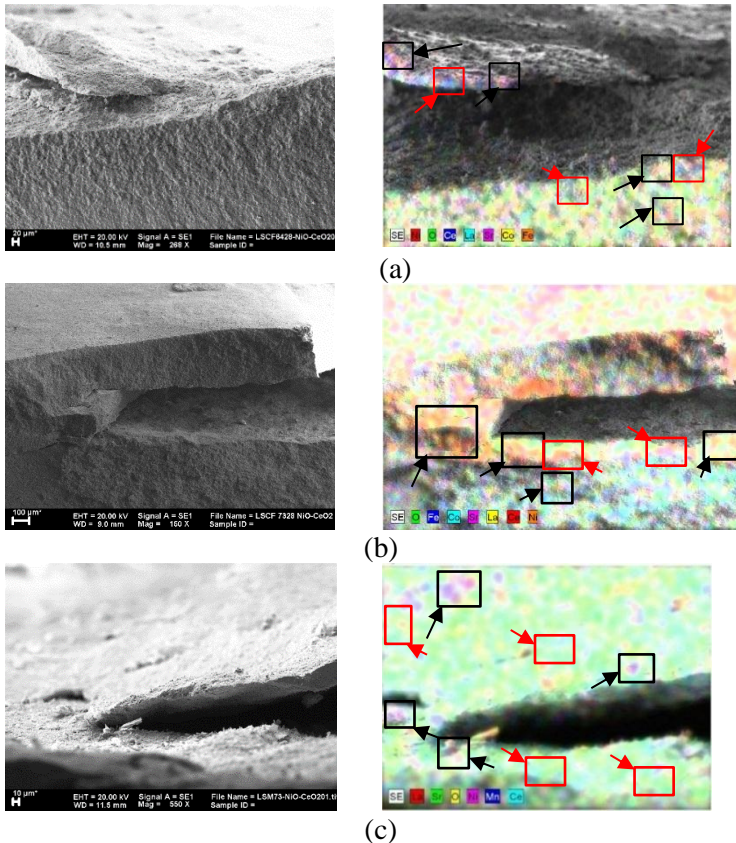


Gambar 4.15 Hasil *mapping* SEM EDX pada membran (a)LSCF 6428-CeO<sub>2</sub>/LSCF 6428; (b) LSCF 7328-CeO<sub>2</sub>/LSCF 7328; (c) LSM 7310-CeO<sub>2</sub>/LSM 7310.

Sebaran unsur Ni dan Ce dari lapisan campuran NiO-CeO<sub>2</sub> dalam membran perovskit-NiO-CeO<sub>2</sub>/perovskit terlihat pada Gambar 4.16. Gambar tersebut menunjukkan bahwa unsur Ni yang berwarna merah pada membran LSCF 6428, oranye pada perovskit



LSCF 7328, dan warna ungu pada perovskit LSM 7310 tampak telah terdistribusi ke dalam lapisan perovskit.



Gambar 4.16 Hasil *mapping* SEM-EDX pada membrane (a) LSCF 6428-NiO-CeO<sub>2</sub>/LSCF 6428; (b) LSCF 7328-NiO-CeO<sub>2</sub>/LSCF 7328; (c) LSM 7310-NiO-CeO<sub>2</sub>/LSM 7310.

Selain unsur Ni, distribusi unsur Ce ke dalam lapisan perovskit juga terjadi pada membran perovskit-NiO-CeO<sub>2</sub>/perovskit. Hal ini

terlihat dari sebaran unsur Ce yang berwarna biru pada membran LSCF 6428, merah pada membran LSCF 7328, dan biru pada membran LSM 7310. Sebaran unsur Ni dan Ce secara lebih jelas ditunjukkan oleh anak panah berwarna hitam dan merah, secara berurutan.

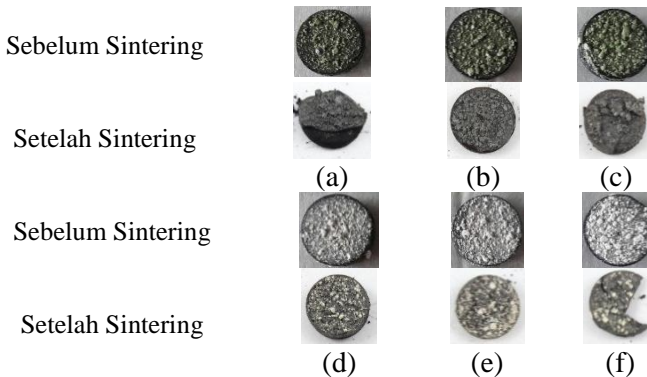
#### **4.2.4 Membran Lapis Ganda NiO-CeO<sub>2</sub>/Perovskit dan CeO<sub>2</sub>/Perovskit dengan Penambahan Agen Perekat**

Membran lapis ganda yang dibuat secara eksklusif dengan metode *dry pressing* ternyata belum dapat menghasilkan membran lapis ganda yang baik. Membran campuran perovskit dan NiO-CeO<sub>2</sub> atau CeO<sub>2</sub> telah terbukti masih retak setelah proses sintering berlangsung. Oleh karena itu maka dilakukan pembuatan membran lapis ganda dengan bantuan perekat (lem) dalam proses pelapisan NiO-CeO<sub>2</sub> atau CeO<sub>2</sub> pada permukaan membran rapat perovskit. Sebelum dilakukan pelapisan pada membran perovskit, serbuk NiO-CeO<sub>2</sub> atau CeO<sub>2</sub> didispersikan terlebih dahulu pada perekat, kemudian bubur NiO-CeO<sub>2</sub> atau CeO<sub>2</sub> dilapiskan pada membran perovskit tunggal yang sudah disinter dengan cara dioleskan di permukaan membran perovskit. Perekat yang digunakan adalah amilum. Perekat organik ini akan terurai menjadi gas-gas CO<sub>2</sub> dan H<sub>2</sub>O, baik ketika melalui proses kalsinasi maupun sintering. Penguraian perekat tidak memerlukan suhu yang tinggi. Setelah membran perovskit terlapisi NiO-CeO<sub>2</sub> atau CeO<sub>2</sub> terbentuk, dilakukan kalsinasi pada suhu 800 °C selama dua jam dengan laju kenaikan suhu 2 °C/menit. Pemilihan suhu 800 °C didasari oleh penelitian Das (2011).

Membran lapis ganda yang disiapkan dengan bantuan perekat amilum pada sebelum dan setelah kalsinasi dapat dilihat pada Gambar 4.17. Lapisan NiO-CeO<sub>2</sub> dan CeO<sub>2</sub> terlihat menempel pada permukaan membran perovskit yang rapat, namun retakan atau patahan terjadi pada membran NiO-CeO<sub>2</sub>/LSCF 6428 yang terlihat pada Gambar 4.17 (a). Patahan lain juga jelas terlihat pada membran lapis ganda CeO<sub>2</sub>/LSM 7310 (terlihat pada Gambar 4.17 (f)). Patahan tersebut terjadi karena adanya perbedaan koefisien

muai panas yang tinggi LSCF 6428 dengan NiO-CeO<sub>2</sub> dan antara LSM 7310 dengan CeO<sub>2</sub> yang sangat besar, yaitu 16,28 ppm/°C dan 12,01 ppm/°C (NiO-CeO<sub>2</sub>/LSCF 6428), 24,14 ppm/°C dan 11,44 ppm/°C (CeO<sub>2</sub>/LSM 7310) pada rentang suhu 800-820 °C.

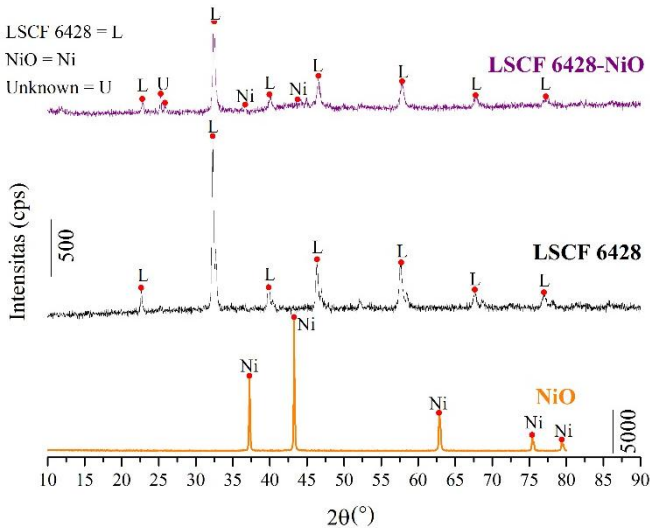
Dari hasil pengamatan pada membran lapis ganda yang telah disinter terlihat bahwa terjadi perubahan warna untuk perovskit terlapisi katalis NiO-CeO<sub>2</sub> dari yang berwarna hijau tua (sebelum disinter) menjadi hitam pekat (setelah disinter), sedangkan perubahan warna tidak terjadi pada membran lapis ganda CeO<sub>2</sub>/perovskit setelah sintering.



Gambar 4.17 Hasil membran perovskit terlapisi NiO-CeO<sub>2</sub> dan CeO<sub>2</sub> dengan agen perekat amilum (a) NiO-CeO<sub>2</sub>/LSCF6428 (b) NiO-CeO<sub>2</sub>/LSCF6428 (c) NiO-CeO<sub>2</sub>/LSCF6428 (d) CeO<sub>2</sub>/LSCF6428 (e) CeO<sub>2</sub>/LSCF6428 (f) CeO<sub>2</sub>/LSCF6428.

Hasil pengamatan sebagaimana diuraikan di atas menunjukkan bahwa perubahan warna tersebut berasal dari unsur penyusun NiO yang berinteraksi dengan partikel-partikel perovskit saat proses sintering berlangsung. Oleh karena itu, analisis difraksi sinar-X dilakukan dengan membran NiO/LSCF 6428 tanpa adanya campuran CeO<sub>2</sub>. Difraktogramnya terlihat pada Gambar 4.18 dimana pada difraktogram NiO/LSCF 6428 terlihat pada  $2\theta = 25-$

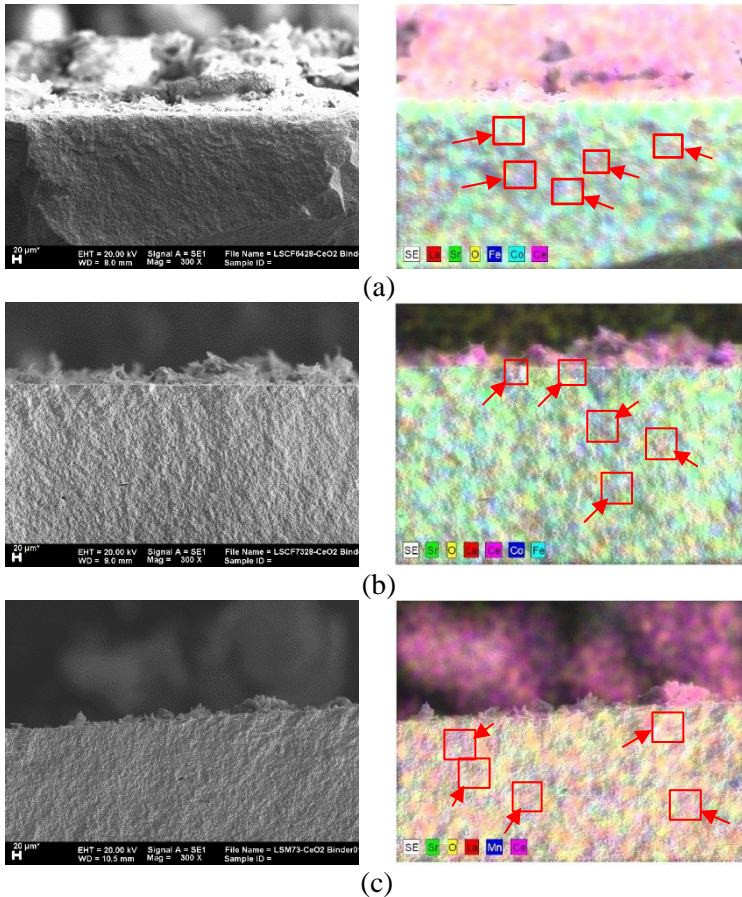
27° terdapat puncak yang diberi label *unknown*. Puncak tersebut tidak berasal dari puncak difraktogram NiO maupun LSCF 6428 sehingga dapat diperkirakan bahwa puncak *unknown* merupakan puncak fasa lain yang terbentuk dari interaksi partikel NiO dan perovskit saat sintering berlangsung.



Gambar 4.18 Analisis difraksi sinar-X membran NiO/LSCF 6428.

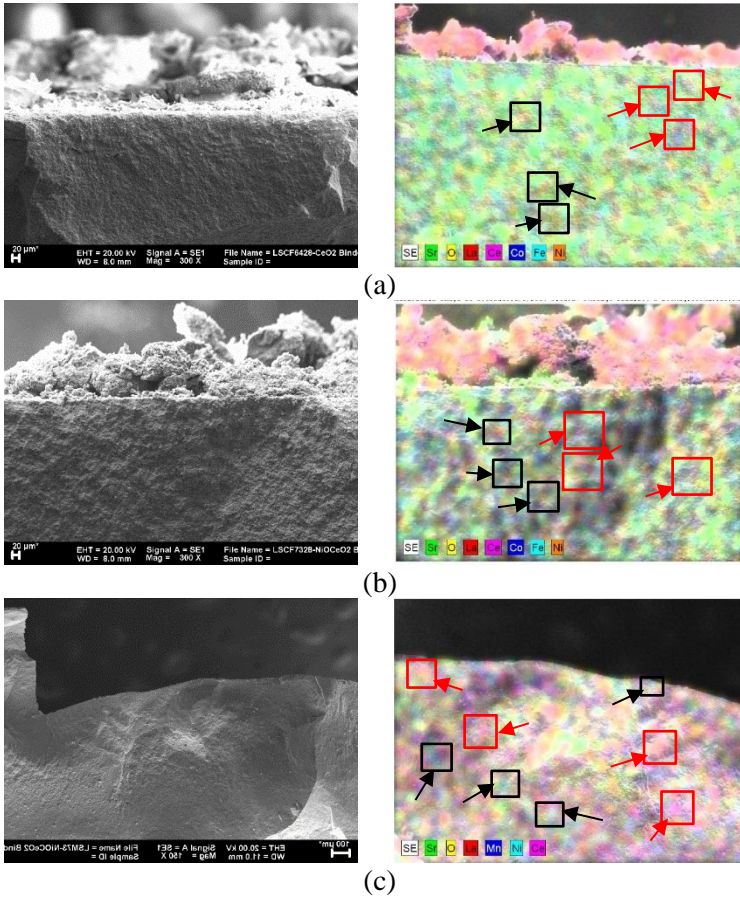
Analisis SEM-EDX dilakukan agar dapat diketahui informasi sebaran unsur-unsur lapisan atas dan lapisan perovskit setelah dikalsinasi pada suhu 800 °C. Hasil analisis SEM-EDX membran CeO<sub>2</sub>/perovskit dan NiO-CeO<sub>2</sub>/perovskit terlihat pada Gambar 4.19-4.20. Pada gambar tersebut terlihat bahwa unsur-unsur penyusun perovskit, seperti La, Sr, Co, dan Fe tersebar merata pada lapisan bawah (lapisan perovskit) dan tidak ada yang terdistribusi ke dalam lapisan atas (lapisan katalis CeO<sub>2</sub> atau NiO-CeO<sub>2</sub>). Sementara itu, unsur Ce dan unsur Ni yang merupakan unsur-unsur penyusun lapisan katalis CeO<sub>2</sub> dan campuran NiO-CeO<sub>2</sub> tidak hanya tersebar merata pada lapisan atas, tetapi

juga terdistribusi pada lapisan perovskit. Distribusi unsur Ce pada membran  $\text{CeO}_2$ /perovskit itu dapat dilihat pada Gambar 4.19 dengan sebaran unsur berwarna ungu dan ditandai dengan anak panah berwarna merah.



Gambar 4.19 Hasil *mapping* SEM EDX pada membran (a)  $\text{CeO}_2$ /LSCF 6428 (b)  $\text{CeO}_2$ /LSCF 7328 (c)  $\text{CeO}_2$ /LSM 7310. Persebaran unsur-unsur Ce ditandai dengan kotak merah.

Sementara itu, sebaran unsur Ce dalam membran NiO-CeO<sub>2</sub>/perovskit dengan warna yang sama (warna ungu) terlihat pada Gambar 4.20.



Gambar 4.20 Hasil *mapping* SEM EDX pada membran (a) NiO-CeO<sub>2</sub>/LSCF 6428 (b) NiO-CeO<sub>2</sub>/LSCF 7328 (c) NiO-CeO<sub>2</sub>/LSM 7310. Persebaran unsur-unsur Ce ditandai dengan kotak merah.



Pada membran  $\text{NiO-CeO}_2/\text{perovskit}$ , sebaran unsur Ni ditunjukkan dengan penyebaran unsur berwarna oranye dalam membran LSCF 6428 dan LSCF 7328 yang terlihat pada Gambar 4.20 (a) dan (b), sedangkan sebaran unsur Ni yang berwarna biru muda dalam membran LSM 7310 dapat dilihat pada Gambar 4.20 (c).

***“Halaman ini sengaja dikosongkan”***



## BAB V

### KESIMPULAN DAN SARAN

#### 5.1 Kesimpulan

Kesimpulan dari penelitian ini adalah lapisan  $\text{CeO}_2$  dan  $\text{NiO-CeO}_2$  sebagai pelapis membran perovskit yang disiapkan dengan metode *dry pressing* memiliki pola kurva muai panas yang berbeda, khususnya pada suhu diatas  $500\text{ }^\circ\text{C}$ . Secara detail, perbedaan nilai rata-rata koefisien muai panas LSCF 6428, LSCF 7328, LSM 7310,  $\text{CeO}_2$ ,  $\text{NiO-CeO}_2$  sebesar 22,16; 9,31; 10,14; 21,11; 12,20 ppm/ $^\circ\text{C}$ . Perbedaan muai panas antara perovskit dengan  $\text{CeO}_2$  dan  $\text{NiO-CeO}_2$  tersebut yang menyebabkan keretakan dan/atau delaminasi pada membran perovskit terlapis  $\text{CeO}_2$  atau  $\text{NiO-CeO}_2$  yang disiapkan dengan metode *dry pressing*. Lapisan  $\text{NiO-CeO}_2$  dan  $\text{CeO}_2$  dapat menempel pada membran perovskit dengan bantuan agen perekat berupa amilum. Walaupun keretakan masih terjadi pada membran lapis ganda  $\text{NiO-CeO}_2/\text{LSCF 6428}$  dan  $\text{CeO}_2/\text{LSM 7310}$  akibat perbedaan muai panas yang sangat besar diantara material tersebut. Namun, hasil analisis difraksi sinar-X menunjukkan bahwa terjadi reaksi antara  $\text{NiO}$  dengan perovskit pada membran lapis ganda  $\text{NiO-CeO}_2/\text{perovskit}$  yang disiapkan dengan agen perekat.

Sementara itu, membran lapis tunggal perovskit LSCF 6428, LSCF 7328, LSM 7310 menunjukkan sifat kekerasan Vicker yang tinggi, yaitu pada rentang 417,9 - 1155 HV. Hasil SEM-EDX menunjukkan bahwa unsur-unsur Ce dan Ni terdistribusi merata pada lapisan perovskit, begitu pula sebaliknya.

#### 5.2 Saran

Penelitian ini mengkaji tentang kompatibilitas  $\text{NiO-CeO}_2$  sebagai pelapis membran perovskit (LSCF 6428, LSCF 7328 dan LSM 7310) berdasarkan nilai koefisien muai panas dari masing-masing material. Penelitian lebih lanjut tentang pemuai kisi pada suhu yang dinaikkan terhadap nilai koefisien muai panas material

tersebut perlu dilakukan dengan bantuan instrument HT-XRD agar dapat diketahui informasi lebih detail tentang perubahan struktur kristal pada rentang suhu tertentu.

## DAFTAR PUSTAKA

- Al-Sayari, S. A. (2013). Recent Developments in the Partial Oxidation of Methane to Syngas. *The Open Catalysis Journal*, Vol 6, hal. 17-28.
- Asadi, A. A., Behrouzifar, A., Iravaninia, M., Mohammadi, T., dan Pak, A. (2012). Preparation and Oxygen Permeation of  $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{Co}_{0.2}\text{Fe}_{0.8}\text{O}_{3-\delta}$  (LSCF) Perovskite-Type Membranes: Experimental Study and Mathematical Modeling. *Industrial dan Engineering Chemistry Research*, Vol. 51, hal. 3069–3080.
- Asencios, Y. J., Nascente, P. A. dan Assaf, E. M. (2012). Partial Oxidation of Methane on NiO-MgO-ZrO<sub>2</sub> Catalysts. *Fuel*, Vol. 97, hal. 630-637.
- Basile, A. dan Gallucci, F. (2011). *Membranes for Membrane Reactors : Preparation, Optimization and Selection*. United Kingdom: John Wiley and Sons Incorporation.
- Batista, R. dan Muccillo, E. (2011). Densification and Grain Growth of 8YSZ Containing NiO. *Ceramic International*, Vol. 37, hal. 1047-1053.
- Bogner, A., Jouneau, P.-H., Thollet, G., Basset, D., dan Gauthier, C. (2007). A History of Scanning Electron Microscopy Developments: Towards “wet-STEM” Imaging. *Micron*, Vol. 38, hal. 390-401.
- Boubaker, K., Bouhafs, M. dan Yacoubi, N. (2003). A Quantitative Alternative to The Vickers Hardness Test Based on Correlation Between Thermal Diffusivity and Hardness-Application to Laser-Hardened Carburized Steel. *NDT and E International*, Vol. 36, hal. 547-552.
- Bouwmeester, H. J. (2003). Dense Ceramic Membranes for Methane Conversion. *Catalysis Today*, Vol. 82, p. 141–150.
- Bulfin, B., Keogh, K., Murphy, B., Lubben, O., Krasnikov, S., dan Shvets, I. (2013). Analytical Model of CeO<sub>2</sub> Oxidation and Reduction. *The Journal of Physical Chemistry*, Vol. 117, hal. 24129-24137.

- Callister, Jr, W. D. dan Rethwisch, D. G. (2010). *Materials Science and Engineering An Introducton*. 8ND ed. Hoboken: John Wiley and Sons Incorporation.
- Cheng, H., Lu, X., Hu, D., Zhang, Y., Ding, W., dan Zhao, H. (2011). Hydrogen Production by Catalytic Partial Oxidation of Coke Oven Gas in  $\text{BaCo}_{0.7}\text{Fe}_{0.2}\text{Nb}_{0.1}\text{O}_{3-\delta}$  Membranes With Surface Modification. *International Journal of Hydrogenn Energy*, Vol. 36, hal. 528-538.
- Cheng, S., Gupta, V. dan Lin, K. (2005). Synthesis and Hydrogen Permeation Properties of Asymmetric Proton-Conducting Ceramic Membranes. *Solid State Ionics*, Vol. 176, hal. 2653-2662.
- Chen, Z., Shao, Z., Ran, R., Zhou, W., Zheng, P., dan Liu, S. (2007). A Dense Oxygen Separation Membrane With A Layered Morphologic Structure. *Journal of Membrane Science*, Vol. 300, hal. 182-190.
- Choque, V., Piscina, P. R. d. l., Molyneux, D. dan Homs, N. (2010). Ruthenium Supported on New  $\text{TiO}_2\text{-ZrO}_2$  Systems as Catalysts for The Partial Oxidation of Methane. *Catalysis Today*, Vol. 149, hal. 248-253.
- da Côte, R. V., Conceição, L. d. dan Souza, M. M. (2013). Structural and Electrical Properties of  $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{Co}_{0.5}\text{Fe}_{0.5}\text{O}_3$  Powders Synthesized by Solid State Reaction. *Ceramics International*, Vol. 39, hal. 7975-7982.
- Das, S. (2011). Study of Decomposition Behaviour of Binders and The Effect of Binder Type on Strength and Density of Alumina Samples. *Thesis, Department of Ceramic Engineering, National Institute of Technology Rourkela*.
- Fansuri, H., Aliyatulmuna, A., Prasetyoko, D., Widiastuti, N., dan Prijamboedhi, B. (2012). Pembuatan membran rapat LSCF sebagai membran katalis pada reaksi oksidasi parsial gas metana. *Prosiding InSINas*, hal. 120-127.

- Fansuri, H., Syafi'i, M. I., Romdoni, S., Masyitoh, A. D., Utomo, W. P., Prasetyoko, D., Widiastuti, N., Murwani, I. K. S. (2017). Preparation of Dense  $\text{Ba}_x\text{S}_{1-x}\text{Co}_{0.8}\text{Fe}_{0.2}\text{O}_3$  Membranes: Effect of  $\text{Ba}^{2+}$  Substituents and Sintering Method to The Density, Hardness and Thermal Expansion Coefficient of The Membranes. *Advanced Materials Letters*, 8(7), hal. 799-806.
- Fansuri, H., Trengginas, T., Zulaicha, V., Utomo, W. P., Widiastuti, N., dan Purwanti, E. (2016). Kerapatan, Kekerasan dan Koefisien Muai Panas Membran Penghantar Ion Oksigen  $\text{LaCo}_{0.8}\text{Fe}_{0.2}\text{O}_{3-\delta}$  Tersubstitusi  $\text{Ca}^{2+}(\text{La}_{1-x}\text{Ca}_x\text{Co}_{0.8}\text{Fe}_{0.2}\text{O}_{3-\delta})$ . *Reaktor*, 16(2), hal. 87-95.
- Fauzinudin, R. (2012). Pembuatan Membran Keramik Perovskit  $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{Co}_y\text{Fe}_{1-y}\text{O}_{3-\delta}$  ( $0,6 < y < 1,0$ ). *Skripsi, Jurusan Kimia, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Institut Teknologi Sepuluh Nopember, Surabaya*.
- Glas, S. A. A. (2013). Catalytic partial oxidation of methane at moderate temperatures. *Thesis, Norwegian University of Science and Technology*.
- Gromada, M., Krząstek, K., Pięciak, L., Kluczowski, R., Krauz, M., Baszczuk, A., Trawczyński, J., Stępień, M. (2010). Perovskite Membranes for Oxygen Separation and Oxy-Combustion Processes. *Ceramic Materials*, Vol. 62, hal. 322-327.
- Haines, P. (2002). *Principle of Thermal Analysis and Calorimetry*. Cambridge: The Royal Society of Chemistry.
- Han, D., Wu, J., Yan, Z., Zhang, K., Liu, J., dan Liu, S. (2014).  $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{Co}_{0.2}\text{Fe}_{0.8}\text{O}_{3-\delta}$  Hollow Fibre Membrane Performance Improvement by Coating of  $\text{Ba}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{Co}_{0.9}\text{Nb}_{0.1}\text{O}_{3-\delta}$  Porous Layer. *RSC Advances*, Vol. 4, hal. 19999–20004.
- Huang, B., Malzbender, J., Steinbrech, R., Wessel, E., Penkalla, H., dan Singheiser, L. (2010). Mechanical Aspects of Ferro-Elastic Behavior And Phase Composition of

- $\text{La}_{0.58}\text{Sr}_{0.4}\text{Co}_{0.2}\text{Fe}_{0.8}\text{O}_{3-\delta}$ . *Journal of Membrane Science*, hal. 183-188.
- Idayati, E. (2008). Perbandingan hasil sintesis oksida perovskit  $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{CoO}_{3-\delta}$  dari tiga variasi metode. *Skripsi, Jurusan Kimia, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Institut Teknologi Sepuluh Nopember, Surabaya*.
- Jiang, S. P. (2008). Development of Lanthanum Strontium Manganite Perovskite Cathode Materials of Solid Oxide Fuel Cells: A Review. *Journal Material Science*, Vol. 43, p. 6799–6833.
- Johnsson, M. dan Lemmens, P. (2007). Crystallography and Chemistry of Perovskites. In: *Handbook of Magnetism and Advanced Magnetic Materials*. New York: John Wiley and Sons Incorporation, hal. 2034-2042.
- Kaiser, A. dan Lutz, R. (2011). Uniaxial Hydraulic Pressing as Shaping Technology for Advanced Ceramic Products of Larger Size. *Interceram*, Vol. 03-04, hal. 230-234.
- Kharton, V., Yaremchenko, A., Kovalevsky, A., Viskup, A., Naumovich, E., dan Kerko, P. (1999). Perovskite-type Oxides for High-Temperature Oxygen Separation Membranes. *Journal of Membrane Science*, Vol. 163, hal. 307-317.
- Khine, M. S., Chen, L., Zhang, S., Lin, J., dan Jiang, P. S. (2013). Syngas Production by Catalytic Partial Oxidation of Methane Over  $(\text{La}_{0.7}\text{A}_{0.3})\text{BO}_3$  (A = Ba, Ca, Mg, Sr, and B = Cr or Fe) Perovskite Oxides for Portable Fuel Cell Applications. *International Journal of Hydrogen Energy*, Vol. 38, hal. 13300-13308.
- Lee, S., Lee, S. K., Woo, S. K., Kim, J. W., Ishihara, T., dan Kim, D. K. (2003). Oxygen-Permeating Property of  $\text{LaSrBFeO}_3$  (B=Co, Ga) Perovskite Membrane Surface-Modified by  $\text{LaSrCoO}_3$ . *Solid State Ionics* 158, Vol. 158, hal. 287– 296.

- Leng, Y. (2013). *Material Characterization: Introduction to Microscopic and Spectroscopic Methods*. 2nd ed. Hong Kong: John Wiley and Sons Incorporation.
- Lipińska-Chwałek, M., Schulze-Küppers, F. dan Malzbender, J. (2015). Mechanical Properties of Pure and Doped Cerium Oxide. *Journal of the European Ceramic Society*, 35(5), hal. 1539-1547.
- Lufaso, M. (2002). Perovskite Synthesis and Analysis Using Structure. *Dissertation, School of the Ohio State University, USA*.
- Mabruroh, L. dan Fansuri, H. (2012). Pembuatan Membran Keramik  $\text{La}_{0,7}\text{Sr}_{0,3}\text{Co}_{0,8}\text{Fe}_{0,2}\text{O}_{3-\delta}$ . *Prosiding Tugas Akhir Semester Genap 2011/2012*.
- Marinsek, M. (2009). Electrical Conductivity of Sintered LSM Ceramics. *Material and Technology*, Vol. 43, hal. 79-84.
- Maulidah, N. dan Fansuri, H. (2010). Sintesis dan Karakterisasi Oksida Perovskit  $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{Co}_{1-y}\text{Fe}_y\text{O}_{3-\delta}$  ( $0,0 \leq x, y \leq 0,5$ ) Dengan Metode Solid-State. *Prosiding, Jurusan Kimia, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Institut Teknologi Sepuluh Nopember, Surabaya*.
- Möbius, A., Henriques, D. dan Markus, T. (2009). Sintering Behaviour of  $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{Co}_{0,2}\text{Fe}_{0,8}\text{O}_{3-\delta}$  ( $0,3 \leq x \leq 0,8$ ) Mixed Conducting Materials. *Journal of the European Ceramic Society*, Vol. 29, hal. 2831-2839.
- Mundschau, M., Burk, C. G. dan Gribble Jr, D. A. (2008). Diesel Fuel Reforming Using Catalytic Membrane Reactors. *Catalysis Today*, Vol. 136, hal. 190-205.
- Nityanand, C., Nalin, W. B., Rajkumar, B. S. dan Chandra, C. M. (2011). Synthesis and Physicochemical Characterization of Nanocrystalline Cobalt Doped Lanthanum Strontium Ferrite. *Solid State Sciences*, Vol. 13, hal. 1022-1030.
- Nugroho, R. A. (2014). Perilaku oksidasi baja API 5L Grade X52 dan weld overlay INCONEL 625 pada temperatur

- tinggi di lingkungan aliran gas oksigen. *Skripsi, Jurusan Teknik Material dan Metalurgi, Fakultas Teknologi Industri, Institut Teknologi Sepuluh Nopember, Surabaya.*
- Nuherdiana, S., Sholichah, N., Iqbal, R. M., Sahasrikirana, M. S., Utomo, W. P., Akhlus, S., Nurlina., Fansuri, H. (2017). Preparation of  $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{Co}_{0.2}\text{Fe}_{0.8}\text{O}_{3-\delta}$  (LSCF 7328) by Combination of Mechanochemical and Solid State Reaction. *Key Engineering Materials*, Vol. 744, hal. 399-403.
- Otsuka, K., Wang, Y., Sunada, S. dan Sunada, I. (1998). Direct Partial Oxidation of Methane to Synthesis Gas by Cerium Oxide. *Journal of Catalysis*, Vol. 175, hal. 152-160.
- Patnaik, P. (2003). *Handbook of Inorganic Chemicals*. New York: McGraw-Hill.
- Prasetyoko, D., Fansuri, H., Ni'mah, Y. L. dan Fadlan, A. (2016). *Karakterisasi Struktur Padatan*. Yogyakarta: Deepublish.
- Rodulfo-Baechler, S. M. (2016). Dual Role of Perovskite Hollow Fiber Membrane in the Methane Oxidation Reactions. Dalam: *Petrochemical Catalyst Materials, Processes, and Emerging Technologies*. Hershey PA: IGI Global book, hal. 385.
- Ruckenstein, E. dan Hu, Y. H. (1999). Methane Partial Oxidation Over NiO/MgO Solid Solution Catalysts. *Applied Catalysis A: General* 183, Vol. 183, hal. 85-92.
- Schulze-Küppers, F., Baumann, S., Tietz, F., Bouwmeester, H., dan Meulenberg, W. (2014). Towards The Fabrication of  $\text{La}_{0.98-x}\text{Sr}_x\text{Co}_{0.2}\text{Fe}_{0.8}\text{O}_{3-\delta}$  Perovskite-type Oxygen Transport Membranes. *Journal of The European Ceramic Society*, 34(15), hal. 3741-3748.
- Setiawati, H. dan Ilmiah, S. (2011). Investigasi sifat fisik dan Mekanik Sistem Perovskit  $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{Co}_{0.8}\text{Fe}_{0.2}\text{O}_{3-\delta}$  ( $x=0,0-0,4$ ) Sebagai Membran Keramik Rapat



- Penghantar Ion Oksigen. *Prosiding Seminar Nasional Kimia dan Pendidikan Kimia (SNKPK)*, Vol. 3, hal. 320-329.
- Shishido, T., Sukenobu, M., Morioka, H., Kondo, M., Wang, Y., Takaki, K., dan Takehira, K. (2002). Partial Oxidation of Methane Over Ni/Mg-Al Oxide Catalysts Prepared by Solid Phase Crystallization Method from Mg-Al Hydrotalcite-Like Precursors. *Applied Catalysis A: General*, Vol. 223, hal. 35-42.
- Singha, R. K., Shukla, A., Konathala, L. S. dan Bal, R. (2017). Effect of Metal-Support Interaction on Activity and Stability of Ni-CeO<sub>2</sub> Catalyst for Partial Oxidation of Methane. *Applied Catalysis B: Environmental*, Vol. 202, hal. 473-488.
- Smith, R. dan Sandland, G. (1922). An Accurate Method of Determining The Hardness of Metals, with Particular Reference to Those of A High Degree of Hardness. *Proceedings of The Institution of Mechanical Engineering*, Vol. 1, hal. 623-641.
- Sridharan, S. (2008). *Delamination behaviour of composite*. Cambridge: Woodhead Publishing Limited.
- Suga, M., Ashina, S., Sakuda, Y., Kazumori, H., Nishiyama, H., Nokuo, T., Alfredsson, V., Kjellman, T., Stevens, S. M., Cho, H. S; Cho, M., Han, L., Che, S., Anderson, M. W., Schuth, F., Deng, H., Yaghi, O. M., Liu, Z., Jeong, H. Y., Stein, Andreas; S, Kazuyuki., R, R., Terasaki, O. Terasaki, O. (2014). Recent Progress in Scanning Electron Microscopy For The Characterization of Fine Structural Details of Nano Materials. *Progress in Solid State Chemistry*, 42(1-2), hal. 1-21.
- Sunarso, J., Baumann, S., Serra, J., Meulenberg, W., Liu, S., Lin, Y., dan da Costa, J. D. (2008). Mixed Ionic–Electronic Conducting (MIEC) Ceramic-Based Membranes for Oxygen Separation. *Journal of Membrane Science*, Vol. 320, hal. 13–41.

- Sunarso, J., Hashim, S. S., Zhu, N. dan Zhou, W. (2017). Perovskite Oxides Applications in High Temperature Oxygen Separation, Solid Oxide Fuel Cell and Membrane Reactor: Areview. *Progress in Energy and Combustion Science*, Vol. 61, hal. 57-77.
- Tai, L. W., Nasrallah, M., Anderson, H., Sparlin, D., dan Sehlin, S. (1995). Structure and Electrical Properties of  $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{Co}_{1-y}\text{Fe}_y\text{O}_3$ . Part 1. The System  $\text{La}_{0.8}\text{Sr}_{0.2}\text{Co}_{1-y}\text{Fe}_y\text{O}_3$ . *Solid State Ionics* 76, Vol. 76, hal. 259-271.
- Tai, L. W., Nasrallah, M., Anderson, H., Sparlin, D., dan Sehlin, S. (1995). Structure and Electrical Properties of  $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{Co}_{1-y}\text{Fe}_y\text{O}_3$ . Part 2. The System  $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{Co}_{0.2}\text{Fe}_{0.8}\text{O}_3$ . *Solid State Ionics* , Vol. 76, hal. 273-283.
- Tan, X., Liu, N., Meng, B., Sunarso, J., Zhang, K., & Liu, S. (2012). Oxygen Permeation Behavior of  $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{Co}_{0.8}\text{Fe}_{0.2}\text{O}_3$  Hollow Fibre Membranes With Highly Concentrated  $\text{CO}_2$  Exposure. *Journal of Membrane Science*, Vol. 389, hal. 216-222.
- Teraoka, Y., Nobunaga, T., Okamoto, K., Miura, N., dan Yamazone, N. (1991). Influence of Constituent Metal Cations in Substituted  $\text{LaCoO}_3$  on Mixed Conductivity and Oxygen Permeability. *Solid State Ionics*, Vol. 48, hal. 207-212.
- Teraoka, Y., Zhang, H., Okamoto, K. dan Yamazone, N. (1988). Mixed Ionic-Electronic Conductivity of  $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{Co}_{1-y}\text{Fe}_y\text{O}_{3-\delta}$  Perovskite-Type Oxides. *Mat. Res. Bull.*, Vol. 23, hal. 51-58.
- Utomo, W. P. (2014). Kajian Permeabilitas Ion Oksigen pada Membran Rapat Asimetris  $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{Co}_{0.8}\text{Fe}_{0.2}\text{O}_{3-\delta}$  (LSCF 7382),  $\text{SrCo}_{0.8}\text{Fe}_{0.2}\text{O}_{3-\delta}$  (SCF 182) dan  $\text{Ba}_{0.5}\text{Sr}_{0.5}\text{Co}_{0.8}\text{Fe}_{0.2}\text{O}_{3-\delta}$  (BSCF 5582). *Tesis, Jurusan Kimia, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Institut Teknologi Sepuluh Nopember, Surabaya.*

- Vernon-Parry, K. D. (2000). Scanning Electron Microscopy: An Introduction. *III-Vs Review*, Vol. 13, hal. 40-45.
- Wei, H., Cao, Y., Ji, W. dan Au, C., 2008. Lattice Oxygen of  $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MO}_3$  (M = Mn, Ni) and  $\text{LaMnO}_{3-\delta}\text{F}_\beta$  Perovskite Oxides for The Partial Oxidation of Methane to Synthesis Gas. *Catalysis Communications*, Vol. 9, hal. 2509-2514.
- West, A. R. (1984). *Solid State Chemistry and its Application*. New Delhi: John Wiley and Sons Incorporation.
- West, A. R. (2014). *Solid State Chemistry and Its Application*. 2nd ed. New Delhi: John Wiley and Sons Incorporation.
- Wulandari, E. (2012). Pembuatan Membran Keramik  $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{Co}_{0,8}\text{Fe}_{0,2}\text{O}_{3-\delta}$  ( $0,0 \leq x \leq 0,4$ ). *Skripsi, Jurusan Kimia, Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam, Institut Teknologi Sepuluh Nopember, Surabaya*.
- Xu, N., Zhao, H., Zhou, X., Wei, W., Lu, X., Ding, W., dan Li, F. (2010). Dependence of Critical Radius of The Cubic Perovskite  $\text{ABO}_3$  Oxides on The Radius of A- and B-Site Cations. *International Journal of Hydrogen Energy*, Vol. 35, hal. 7295-7301.
- Xu, M., Fu, Z., Li, L., Wang, J., Wu, c., Zhao, Y., dan Zuo, H. (2013). The Microstructure and Thermochromic Properties of  $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ . *Advanced Materials Research*, Vol. 690-693, hal. 648-653.
- York, A. P., Xiao, T. dan Green, M. L. (2003). Brief Overview of The Partial Oxidation of Methane to Synthesis Gas. *Topics in Catalysis*, Vol. 22, hal. 3-4.
- Yun, K. S., Yoo, C.-Y., Yoon, S.-G., Yu, J. H., dan Joo, J. H. (2015). Chemically and Thermo-Mechanically Stable LSM-YSZ Segmented Oxygen Permeable Ceramic Membrane. *Journal of Membrane Science*, Vol. 486, hal. 222-228.
- Yurugi, T., Numata, Y., Ito, S. dan Sykes, K. (2011). SEM/EDX-Integrated Analysis System SEM/EDX-Integrated Analysis System. *Feature Article HORIBA*.

- Zhang, K., Sunarso, J., Shao, Z., Zhou, W., Sun, C., Wang, S., dan Liu, S. (2011). Research Progress and Materials Selection Guidelines on Mixed Conducting Perovskite-Type Ceramic Membranes for Oxygen Production. *RSC Advances*, Vol. 1, hal. 1661-1676.
- Zhao, L., Drenman, J., Kong, C., Amarasinghe, S., dan Jiang, S. P. (2014). Insight Into Surface Segregation and Chromium Deposition on  $\text{La}_{0.6}\text{Sr}_{0.4}\text{Co}_{0.2}\text{Fe}_{0.8}\text{O}_{3-\delta}$  Cathodes of Solid Oxide Fuel Cells. *Journal of Materials Chemistry A*, Vol. 2, hal. 11114–11123.
- Zhu, T. dan Flytzani-Stephanopoulos, M. (2001). Catalytic Partial Oxidation of Methane to Synthesis Gas Over Ni-CeO<sub>2</sub>. *Applied Catalysis A: General*, Vol. 208, hal. 403-417.
- Zhu, X. dan Yang, W. (2008). Composite Membrane Based on Ionic Conductor and Mixed Conductor for Oxygen Permeation. *AIChE Journal*, Vol. 54(3), hal. 665-672.
- Zuev, A. dan Tsvetkov, D. (2010). Oxygen Nonstoichiometry, Defect Structure and Defect-Induced Expansion of Undoped Perovskite  $\text{LaMnO}_{3\pm\delta}$ . *Solid State Ionics*, Vol. 181, hal. 557–563.

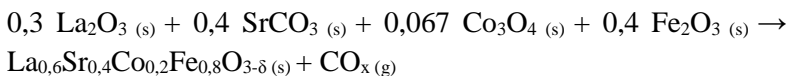
## LAMPIRAN

### LAMPIRAN A PERHITUNGAN

#### 1. Perhitungan Reaktan

##### ➤ Perhitungan Stoikiometri LSCF 6428

- Reaksi yang terjadi :



- Data berat molekul

$$\text{Mr La}_{0,6}\text{Sr}_{0,4}\text{Co}_{0,2}\text{Fe}_{0,8}\text{O}_{3-\delta} = 222,8576 \text{ g/mol}$$

$$\text{Mr La}_2\text{O}_3 = 325,8 \text{ g/mol}$$

$$\text{Mr SrCO}_3 = 147,6 \text{ g/mol}$$

$$\text{Mr Co}_3\text{O}_4 = 240,7 \text{ g/mol}$$

$$\text{Mr Fe}_2\text{O}_3 = 159,6 \text{ g/mol}$$

- Massa produk yang diinginkan adalah 25 g.
- Perhitungan mol LSCF 6428

$$\begin{aligned} \text{Mol produk yang diinginkan} &= \frac{\text{massa produk yang diinginkan}}{Mr} \\ &= \frac{25 \text{ g}}{222,8576 \text{ g/mol}} \\ &= 0,112 \text{ mol} \end{aligned}$$

- Perhitungan massa prekursor yang dibutuhkan

- $\text{La}_2\text{O}_3$

$$\begin{aligned} \text{Mol La}_2\text{O}_3 &= 0,3 \times 0,112 \text{ mol} \\ &= 0,033 \text{ mol} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \text{Massa La}_2\text{O}_3 &= \text{mol La}_2\text{O}_3 \times \text{Mr La}_2\text{O}_3 \\ &= 0,033 \text{ mol} \times 325,8 \text{ g/mol} \\ &= 10,967 \text{ g} \end{aligned}$$

- $\text{SrCO}_3$

$$\begin{aligned}\text{Mol SrCO}_3 &= 0,4 \times 0,112 \text{ mol} \\ &= 0,044 \text{ mol}\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}\text{Massa SrCO}_3 &= \text{mol SrCO}_3 \times \text{Mr SrCO}_3 \\ &= 0,044 \text{ mol} \times 147,6 \text{ g/mol} \\ &= 6,625 \text{ g}\end{aligned}$$

- $\text{Co}_3\text{O}_4$

$$\begin{aligned}\text{Mol Co}_3\text{O}_4 &= 0,067 \times 0,112 \text{ mol} \\ &= 0,007 \text{ mol}\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}\text{Massa Co}_3\text{O}_4 &= \text{mol Co}_3\text{O}_4 \times \text{Mr CoCO}_3 \\ &= 0,007 \text{ mol} \times 240,7 \text{ g/mol} \\ &= 1,800 \text{ g}\end{aligned}$$

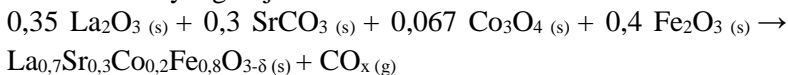
- $\text{Fe}_2\text{O}_3$

$$\begin{aligned}\text{Mol Fe}_2\text{O}_3 &= 0,4 \times 0,112 \text{ mol} \\ &= 0,044 \text{ mol}\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}\text{Massa Fe}_2\text{O}_3 &= \text{mol Fe}_2\text{O}_3 \times \text{Mr Fe}_2\text{O}_3 \\ &= 0,044 \text{ mol} \times 159,674 \text{ g/mol} \\ &= 7,163 \text{ g}\end{aligned}$$

➤ Perhitungan Stoikiometri LSCF 7328

- Reaksi yang terjadi



- Data berat molekul

$$\text{Mr La}_{0,7}\text{Sr}_{0,3}\text{Co}_{0,2}\text{Fe}_{0,8}\text{O}_{3-\delta} = 227,916 \text{ g/mol}$$

$$\text{Mr La}_2\text{O}_3 = 325,8 \text{ g/mol}$$

$$\text{Mr SrCO}_3 = 147,6 \text{ g/mol}$$

$$\text{Mr Co}_3\text{O}_4 = 240,7 \text{ g/mol}$$

$$\text{Mr Fe}_2\text{O}_3 = 159,6 \text{ g/mol}$$

- Massa produk yang diinginkan adalah 25 g.

- Perhitungan mol LSCF 7328

$$\begin{aligned}\text{Mol produk yang diinginkan} &= \frac{\text{massa produk yang diinginkan}}{Mr} \\ &= \frac{25 \text{ g}}{227,916 \text{ g/mol}} \\ &= 0,548 \text{ mol}\end{aligned}$$

- Perhitungan massa prekursor yang dibutuhkan

- $\text{La}_2\text{O}_3$

$$\begin{aligned}\text{Mol La}_2\text{O}_3 &= 0,35 \times 0,548 \text{ mol} \\ &= 0,191 \text{ mol}\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}\text{Massa La}_2\text{O}_3 &= \text{mol La}_2\text{O}_3 \times \text{Mr La}_2\text{O}_3 \\ &= 0,191 \text{ mol} \times 325,8 \text{ g/mol} \\ &= 62,539 \text{ g}\end{aligned}$$

- $\text{SrCO}_3$

$$\begin{aligned}\text{Mol SrCO}_3 &= 0,3 \times 0,548 \text{ mol} \\ &= 24,285 \text{ mol}\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}\text{Massa SrCO}_3 &= \text{mol SrCO}_3 \times \text{Mr SrCO}_3 \\ &= 24,285 \text{ mol} \times 147,6 \text{ g/mol} \\ &= 0,164 \text{ g}\end{aligned}$$

- $\text{Co}_3\text{O}_4$

$$\begin{aligned}\text{Mol Co}_3\text{O}_4 &= 0,067 \times 0,548 \text{ mol} \\ &= 0,036 \text{ mol}\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}\text{Massa Co}_3\text{O}_4 &= \text{mol Co}_3\text{O}_4 \times \text{Mr Co}_3\text{O}_4 \\ &= 0,036 \text{ mol} \times 240,7 \text{ g/mol} \\ &= 8,800 \text{ g}\end{aligned}$$

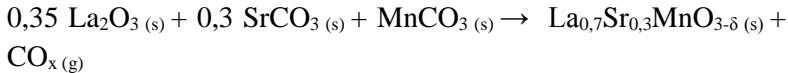
- $\text{Fe}_2\text{O}_3$

$$\begin{aligned}\text{Mol Fe}_2\text{O}_3 &= 0,4 \times 0,548 \text{ mol} \\ &= 0,219 \text{ mol}\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}\text{Massa Fe}_2\text{O}_3 &= \text{mol Fe}_2\text{O}_3 \times \text{Mr Fe}_2\text{O}_3 \\ &= 0,219 \text{ mol} \times 159,6 \text{ g/mol} \\ &= 35,012 \text{ g}\end{aligned}$$

➤ Perhitungan Stoikiometri LSM 7310

- Reaksi yang terjadi



- Data berat molekul

$$\text{Mr La}_{0,7}\text{Sr}_{0,3}\text{MnO}_{3-\delta} = 226,486 \text{ g/mol}$$

$$\text{Mr La}_2\text{O}_3 = 325,8 \text{ g/mol}$$

$$\text{Mr SrCO}_3 = 147,6 \text{ g/mol}$$

$$\text{Mr MnCO}_3 = 115 \text{ g/mol}$$

- Massa produk yang diinginkan adalah 25 g.
- Perhitungan mol LSM 7310

$$\begin{aligned} \text{Mol produk yang diinginkan} &= \frac{\text{massa produk yang diinginkan}}{\text{Mr}} \\ &= \frac{25 \text{ g}}{226,486 \text{ g/mol}} \\ &= 0,110 \text{ mol} \end{aligned}$$

- Perhitungan massa prekursor yang dibutuhkan

- $\text{La}_2\text{O}_3$

$$\begin{aligned} \text{Mol La}_2\text{O}_3 &= 0,35 \times 0,110 \text{ mol} \\ &= 0,038 \text{ mol} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \text{Massa La}_2\text{O}_3 &= \text{mol La}_2\text{O}_3 \times \text{Mr La}_2\text{O}_3 \\ &= 0,038 \text{ mol} \times 325,8 \text{ g/mol} \\ &= 12,586 \text{ g} \end{aligned}$$

- $\text{SrCO}_3$

$$\begin{aligned} \text{Mol SrCO}_3 &= 0,3 \times 0,110 \text{ mol} \\ &= 0,033 \text{ mol} \end{aligned}$$

$$\text{Massa SrCO}_3 = \text{mol SrCO}_3 \times \text{Mr SrCO}_3$$



$$\begin{aligned} &= 0,033 \text{ mol} \times 147,6 \text{ g/mol} \\ &= 4,887 \text{ g} \end{aligned}$$

- $\text{MnCO}_3$

$$\begin{aligned} \text{Mol MnCO}_3 &= 1 \times 0,110 \text{ mol} \\ &= 0,110 \text{ mol} \end{aligned}$$

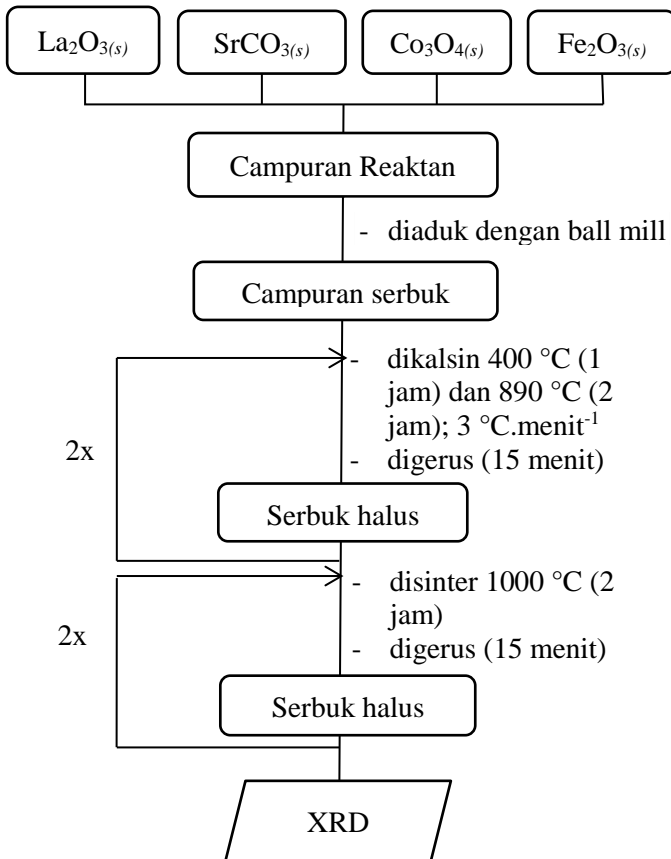
$$\begin{aligned} \text{Massa Co}_3\text{O}_4 &= \text{mol Co}_3\text{O}_4 \times \text{Mr Co}_3\text{O}_4 \\ &= 0,110 \text{ mol} \times 115 \text{ g/mol} \\ &= 12,693 \text{ g} \end{aligned}$$

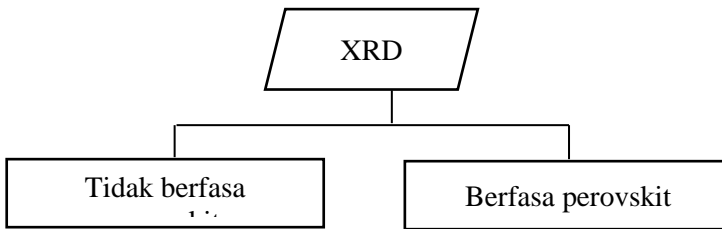
## LAMPIRAN B

### SKEMA KERJA

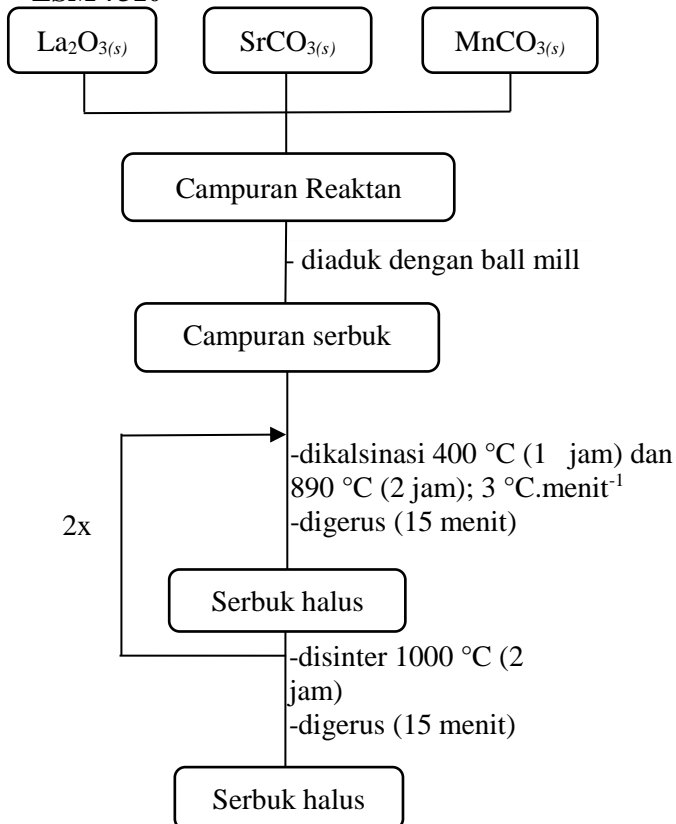
#### 1. Sintesis Oksida Perovskit

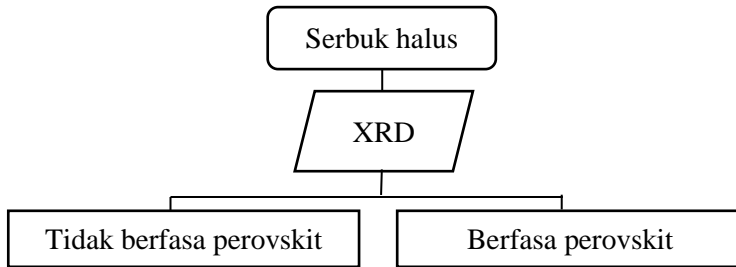
- LSCF 6428 dan LSCF 7328



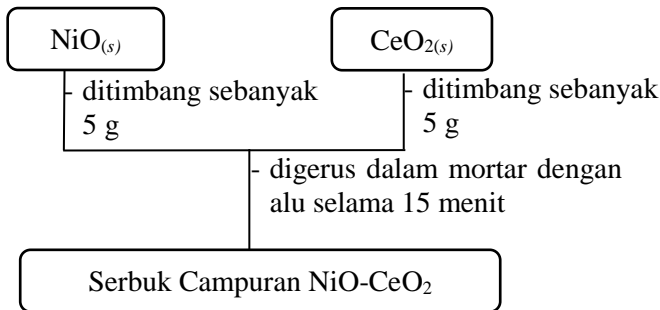


• **LSM 7310**

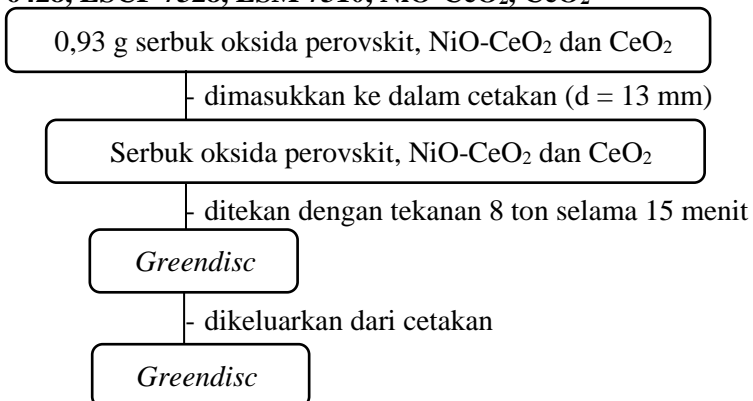


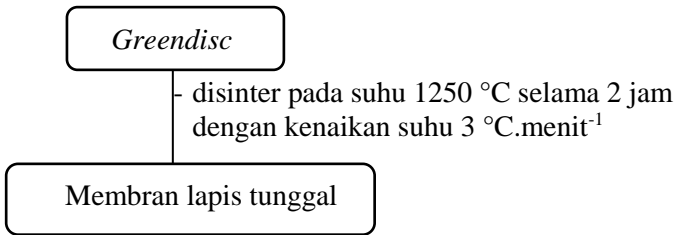


## 2. Pembuatan Campuran NiO-CeO<sub>2</sub>

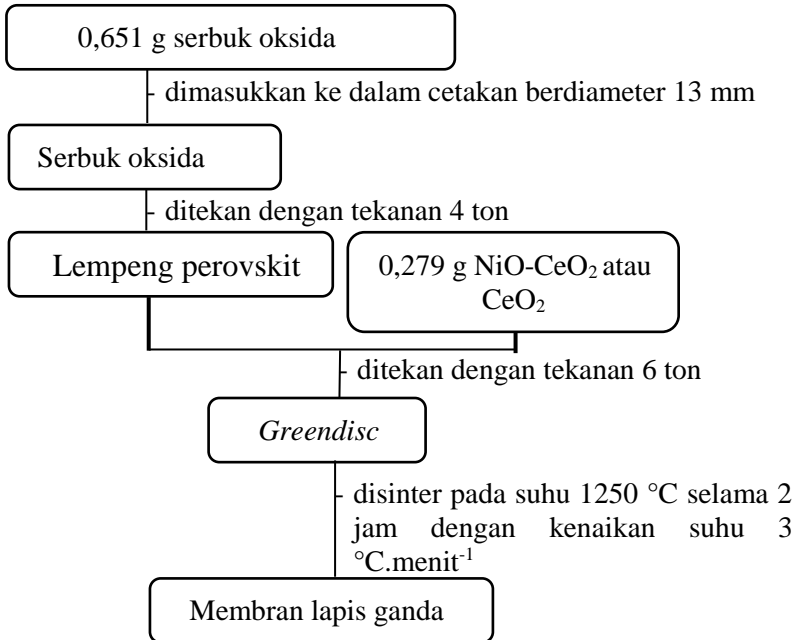


## 3. Pembuatan Membran Lapis Tunggal Perovskit LSCF 6428, LSCF 7328, LSM 7310, NiO-CeO<sub>2</sub>, CeO<sub>2</sub>

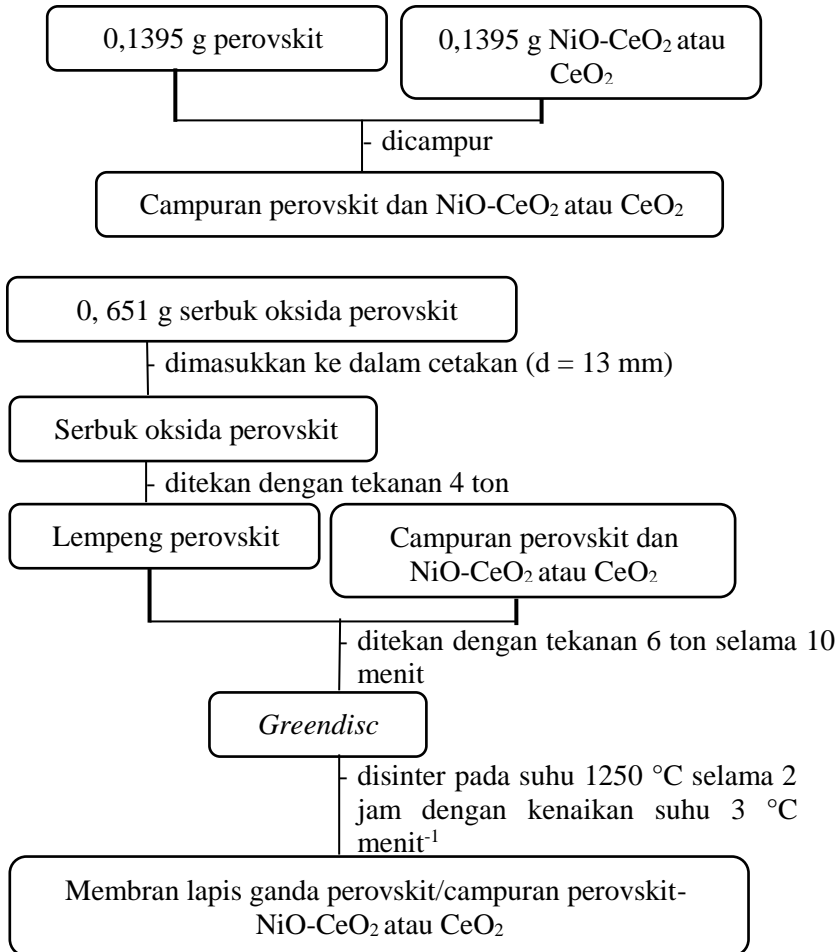




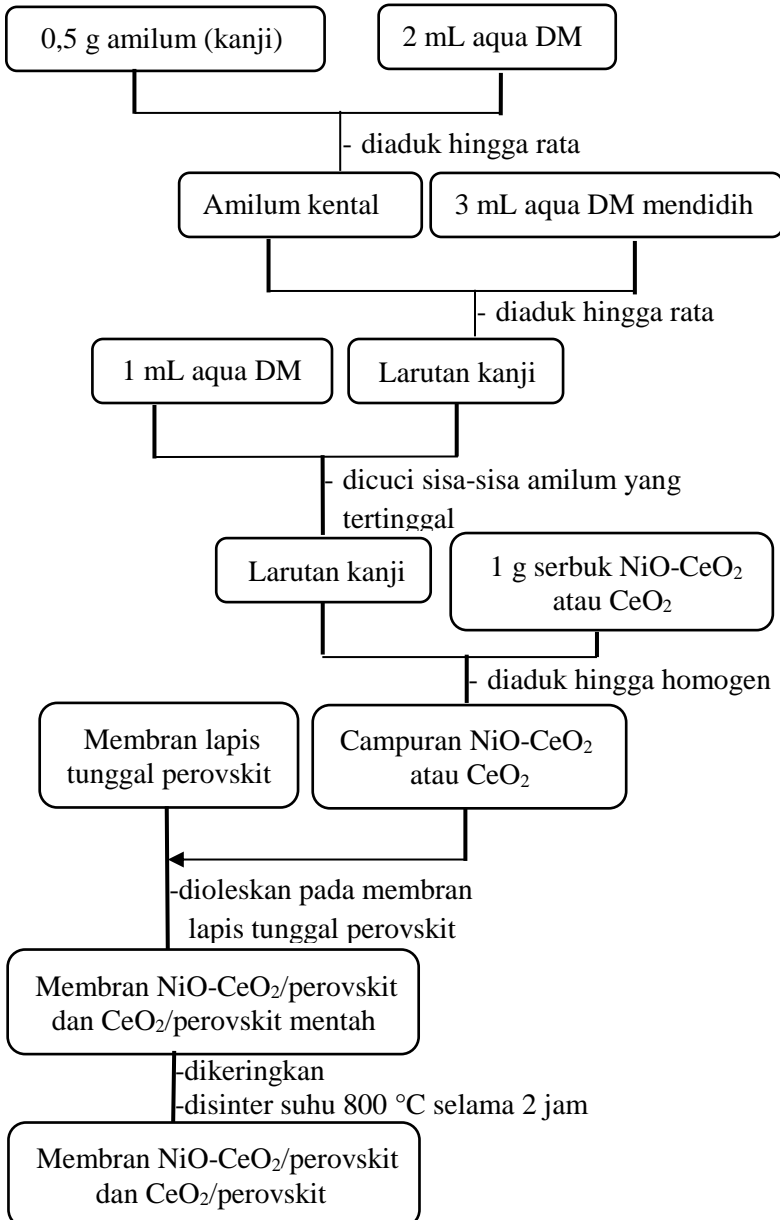
#### 4. Pembuatan Membran Lapis Ganda Perovskit/ NiO-CeO<sub>2</sub> atau CeO<sub>2</sub>



## 5. Pembuatan Membran Lapis Ganda Perovskit dan Campuran Perovskit – NiO-CeO<sub>2</sub> atau CeO<sub>2</sub>



## 6. Pembuatan Membran Perovskit Terlapisi NiO-CeO<sub>2</sub> atau CeO<sub>2</sub> dengan agen perekat

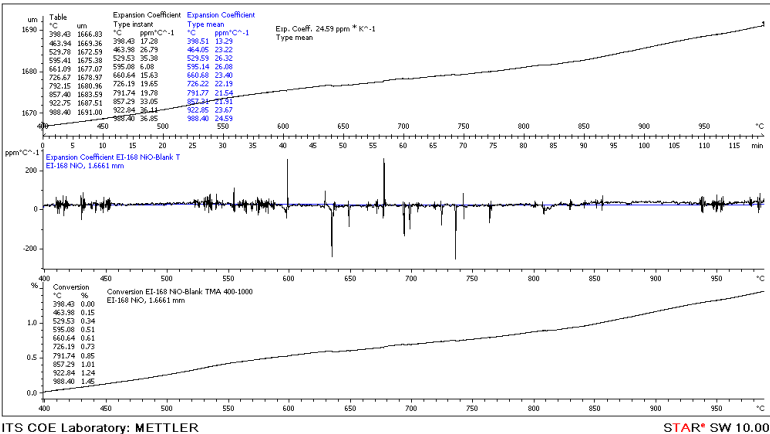


LAMPIRAN B

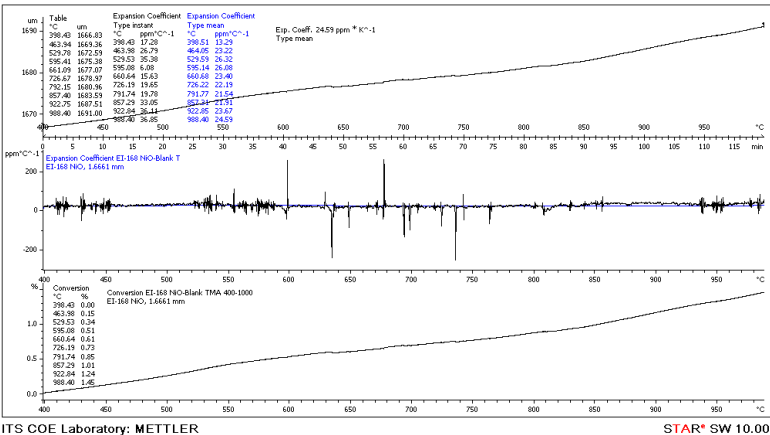
DATA PENDUKUNG

1. Hasil TMA

1.1 LSCF 6428

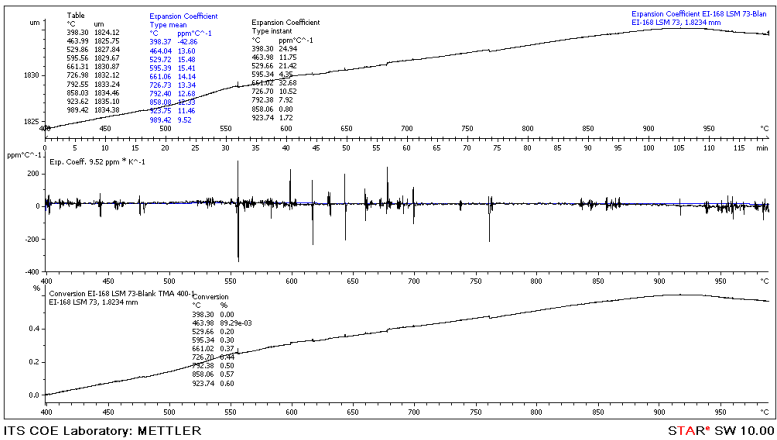


1.2 LSCF 7328

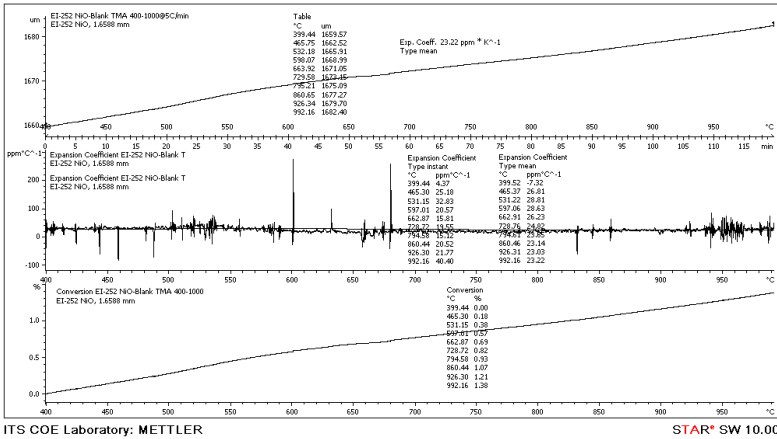




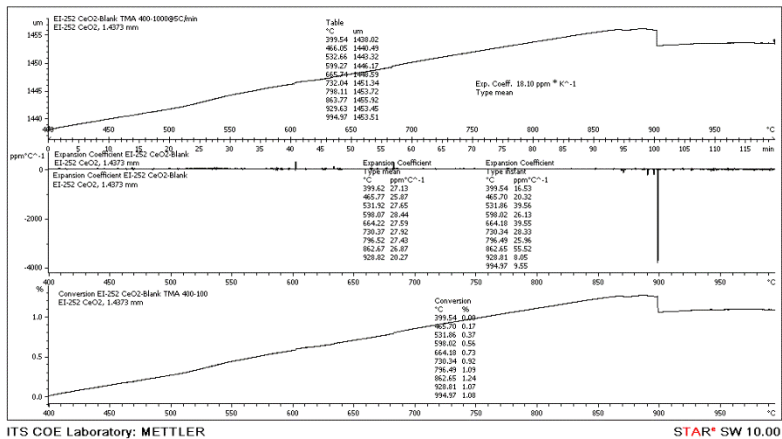
1.3 LSM 7310



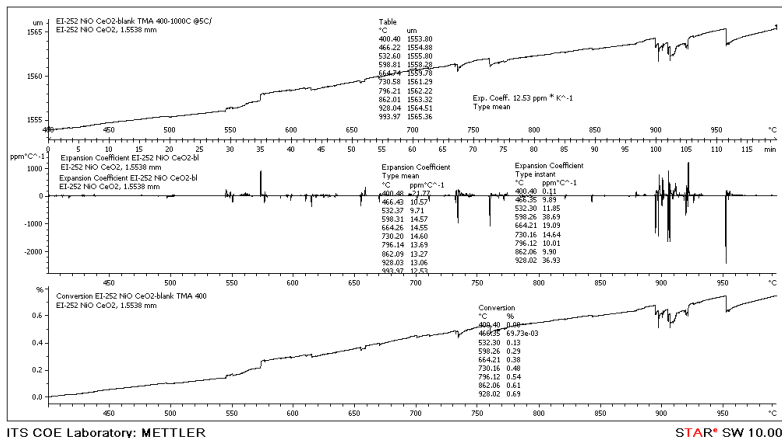
1.4 NiO



1.5 CeO<sub>2</sub>

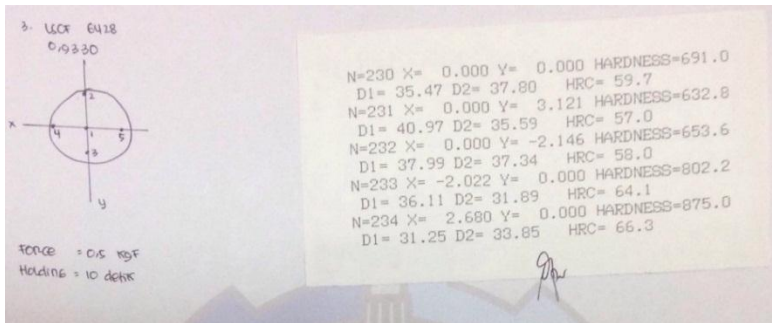


1.6 NiO-CeO<sub>2</sub>

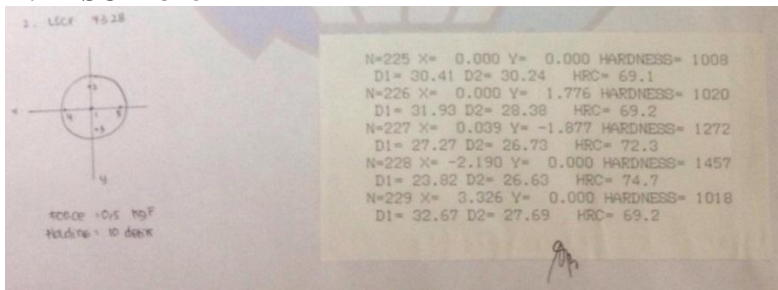


2. Hasil Uji Kekerasan

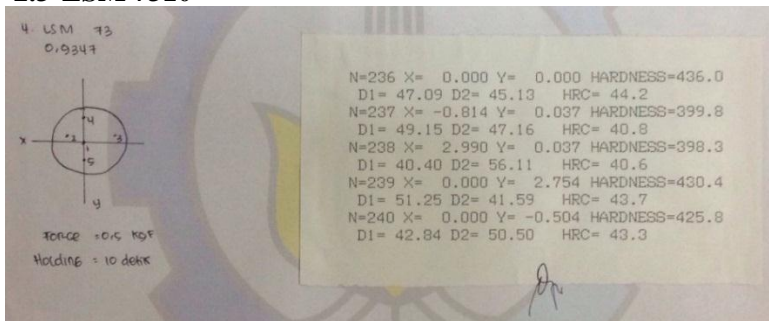
2.1 LSCF 6428



## 2.2 LSCF 7328



## 2.3 LSM 7310

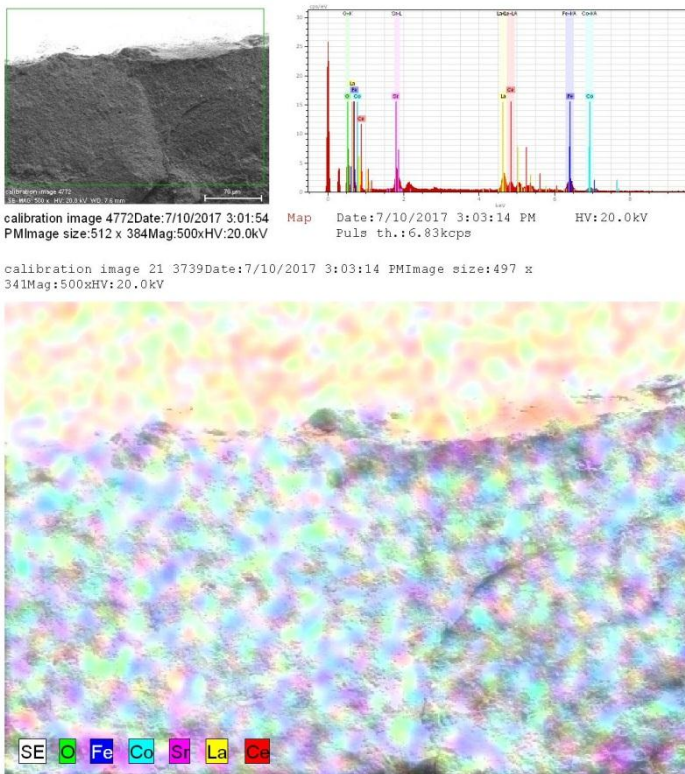


### 3. Hasil SEM-EDX

#### 3.1 Membran Lapis Ganda Campuran Perovskit – NiO-CeO<sub>2</sub> /Perovskit dan Perovskit -CeO<sub>2</sub>/Perovskit

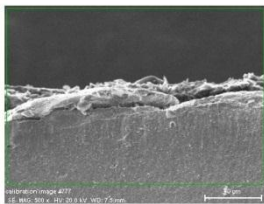
##### 3.1.1 LSCF 6428-CeO<sub>2</sub>/LSCF 6428

LSCF 6428 CeO<sub>2</sub>

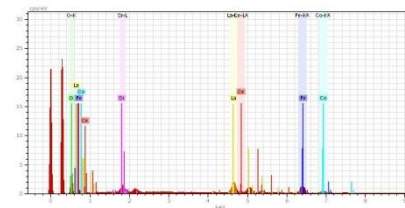


### 3.1.2 LSCF 7328-CeO<sub>2</sub>/LSCF 7328

LSCF 7328 CeO<sub>2</sub>

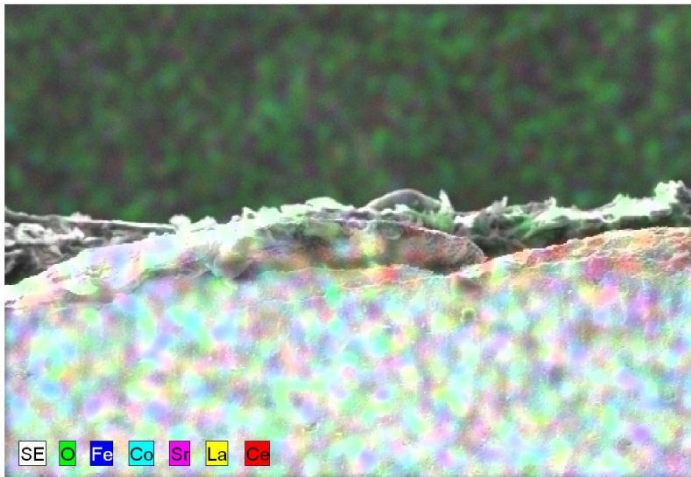


calibration image 4777 Date: 7/10/2017 3:25:52  
PM Image size: 512 x 384 Mag: 500x HV: 20.0kV



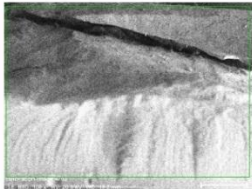
Map Date: 7/10/2017 3:29:33 PM HV: 20.0kV  
Puls th.: 4.13kcp

calibration image 21 3741 Date: 7/10/2017 3:29:34 PM Image size: 497 x  
341 Mag: 500x HV: 20.0kV

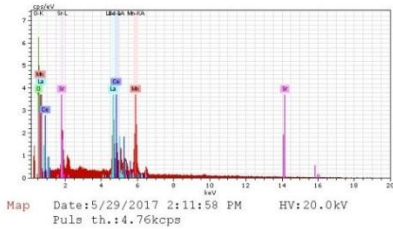


### 3.1.3 LSM 7310-CeO<sub>2</sub>/LSM 7310

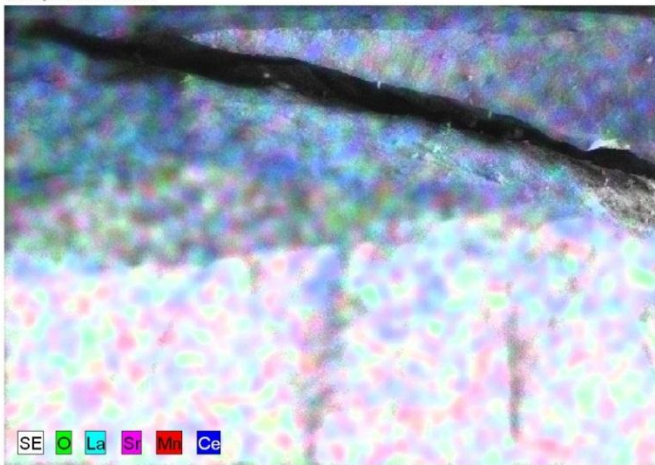
#### Application Note



calibration image 4702 Date: 5/29/2017 2:09:05  
PMImage size: 512 x 384 Mag: 100x HV: 20.0kV



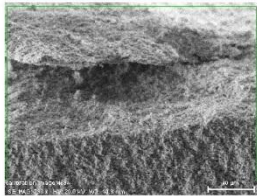
calibration image 21 3687 Date: 5/29/2017 2:11:59 PMImage size: 497 x 349 Mag: 100x HV: 20.0kV



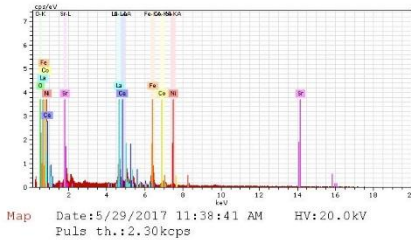


### 3.1.4 LSCF 6428-NiO-CeO<sub>2</sub>/LSCF 6428

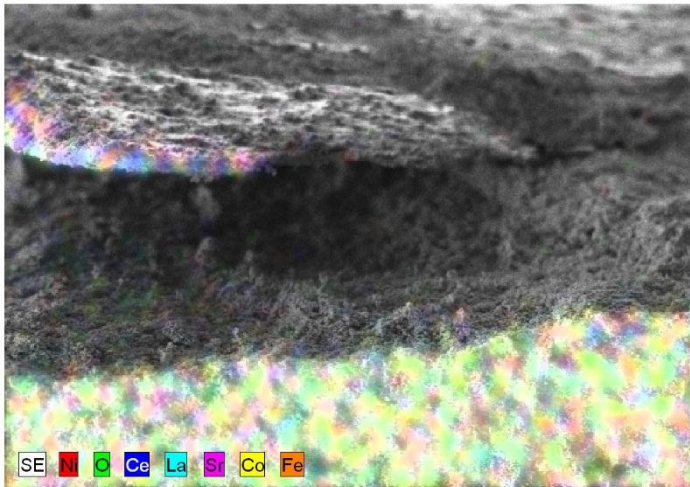
#### Application Note



calibration image 4694 Date: 5/29/2017  
11:33:23 AM Image size: 512 x  
384 Mag: 738.12006x HV: 20.0kV

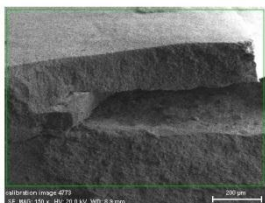


calibration image 21 3692 Date: 5/29/2017 11:38:41 AM Image size: 497 x  
349 Mag: 738.12006x HV: 20.0kV

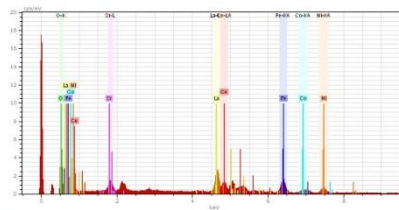


### 3.1.5 LSCF 7328- NiO-CeO<sub>2</sub>/LSCF 7328

**LSCF 7328 NiO-CeO<sub>2</sub>**

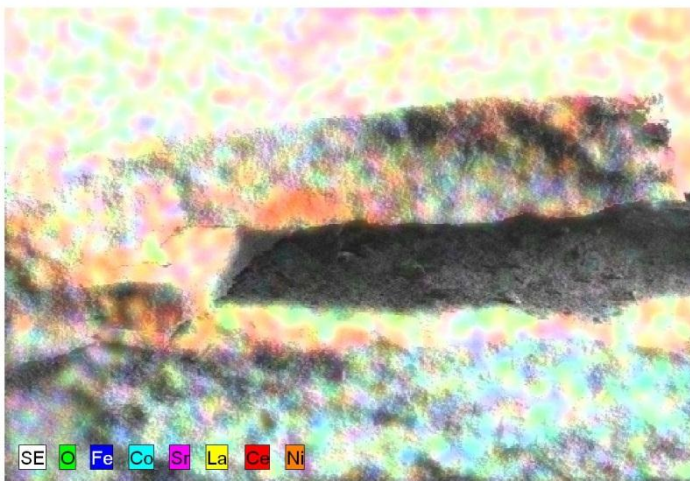


calibration image 4773 Date:7/10/2017 3:07:13  
PMImage size:512 x 384Mag:150xHV:20.0kV



Map Date:7/10/2017 3:08:33 PM  
Puls th.:4.88keps HV:20.0kV

calibration image 21 3740 Date:7/10/2017 3:08:33 PMImage size:497 x  
341Mag:150xHV:20.0kV



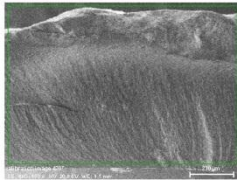
7/10/2017

5. Page

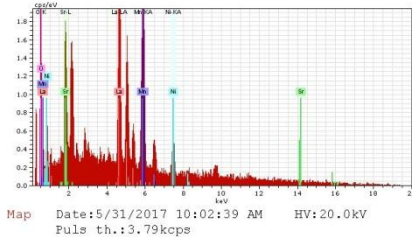


### 3.1.6 LSM 7310- NiO-CeO<sub>2</sub>/LSM 7310

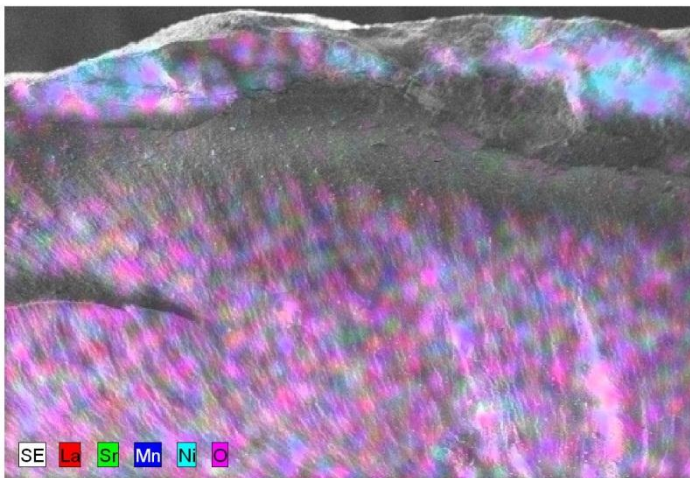
#### Application Note



calibration image  
4707Date:5/31/2017 10:01:01  
AMImage size:512 x  
384Mag:150xHV:20.0kV



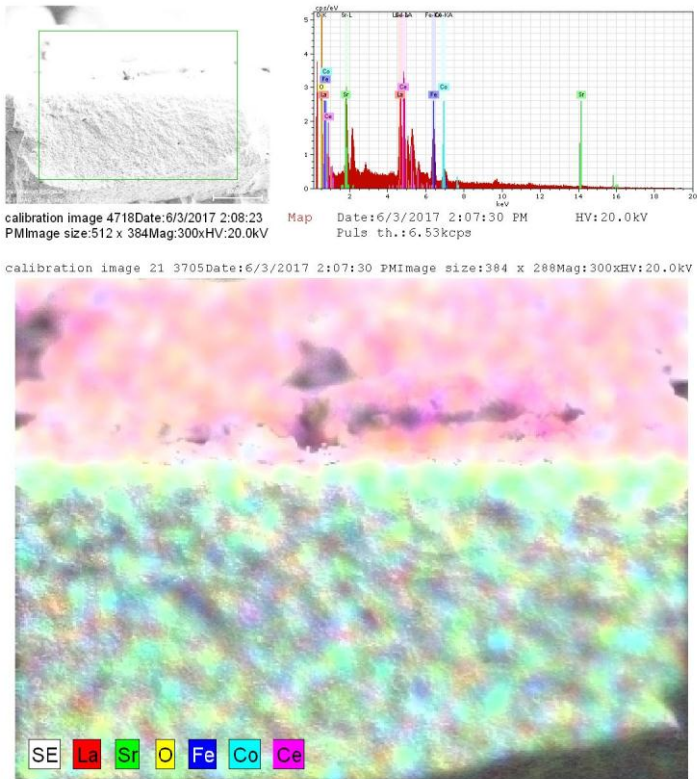
calibration image 21 3693Date:5/31/2017 10:02:39 AMImage size:498 x  
341Mag:150xHV:20.0kV



## 3.2 Membran Lapis Ganda $\text{CeO}_2$ /Perovskit dan $\text{NiO-CeO}_2$ /Perovskit dengan Penambahan Agen Perekat

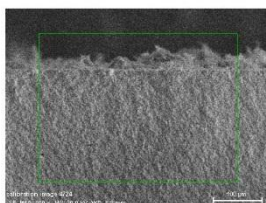
### 3.2.1 $\text{CeO}_2$ /LSCF 6428

#### Application Note

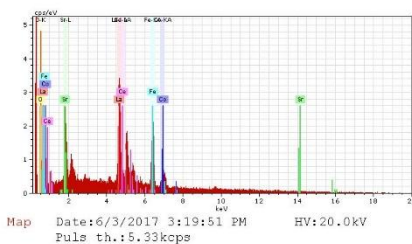


### 3.2.2 CeO<sub>2</sub>/LSCF 7328

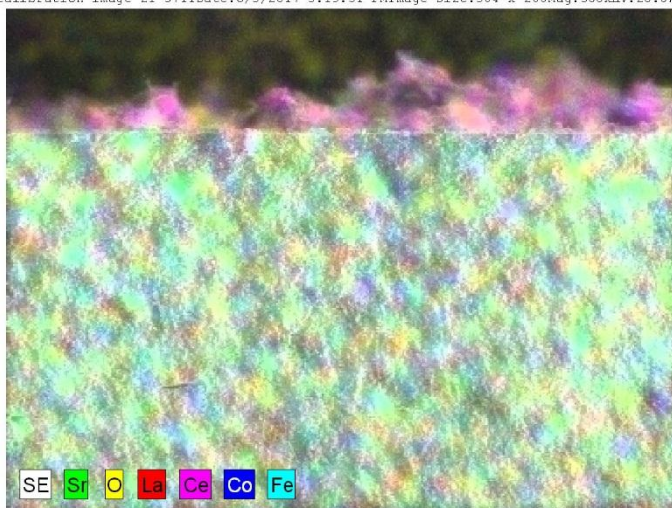
#### Application Note



calibration image 4724 Date: 6/3/2017 3:17:57  
PM Image size: 512 x 384 Mag: 300x HV: 20.0kV

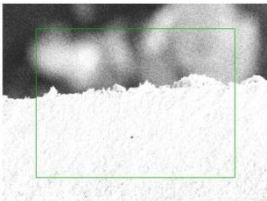


calibration image 21 3711 Date: 6/3/2017 3:19:51 PM Image size: 384 x 288 Mag: 300x HV: 20.0kV

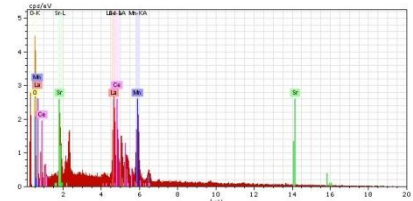


3.2.3 CeO<sub>2</sub>/LSM 7310

Application Note

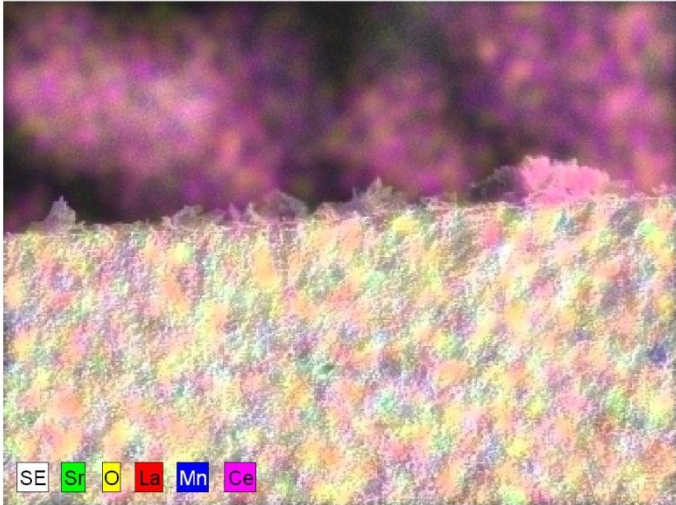


calibration image 4721 Date:6/3/2017 2:38:08  
PMImage size:512 x 384Mag:300xHV:20.0kV



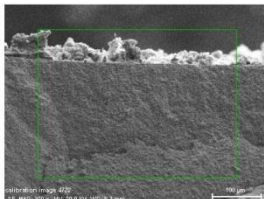
Map Date:6/3/2017 2:37:26 PM HV:20.0kV  
Pulse th.:4.45kcps

calibration image 21 3708 Date:6/3/2017 2:37:27 PMImage size:384 x 288Mag:300xHV:20.0kV

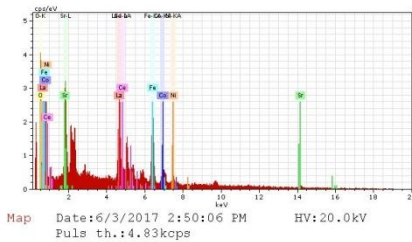


### 3.2.4 NiO-CeO<sub>2</sub>/LSCF 6428

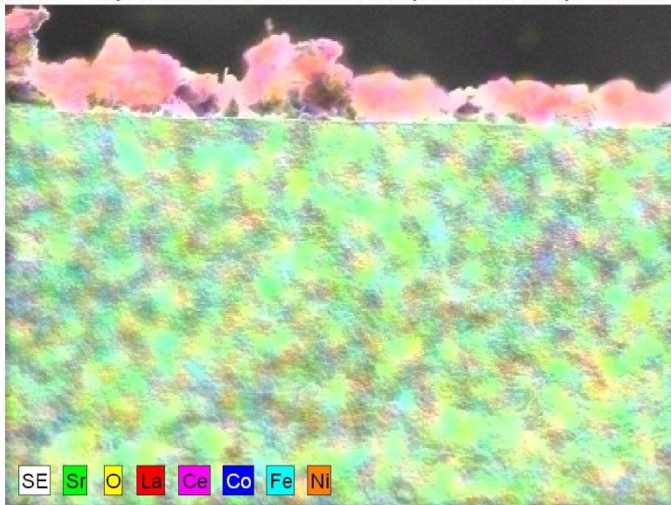
#### Application Note



calibration image 4722 Date:6/3/2017 2:48:00  
PMImage size:512 x 384Mag:300xHV:20.0kV



calibration image 21 3709 Date:6/3/2017 2:50:07 PMImage size:384 x 288Mag:300xHV:20.0kV



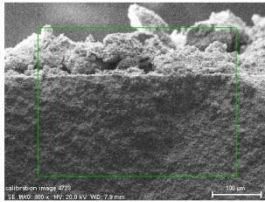
6/3/2017

2. Page

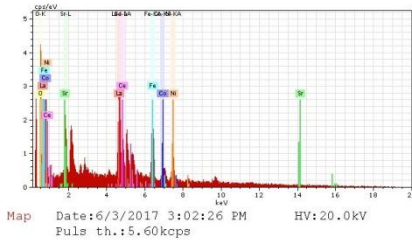


### 3.2.5 NiO-CeO<sub>2</sub>/LSCF 7328

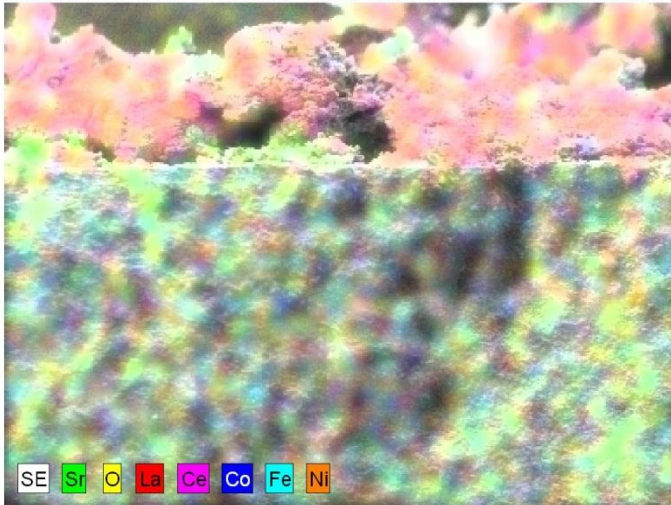
#### Application Note



calibration image 4723 Date: 6/3/2017 3:00:23  
PMImage size: 512 x 384 Mag: 300x HV: 20.0kV

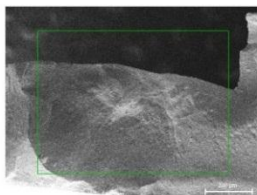


calibration image 21 3710 Date: 6/3/2017 3:02:27 PMImage size: 384 x 288 Mag: 300x HV: 20.0kV

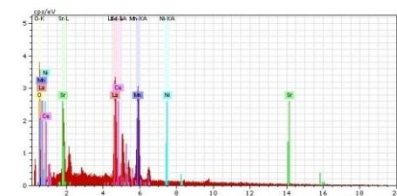


### 3.2.6 NiO-CeO<sub>2</sub>/LSM 7310

#### Application Note

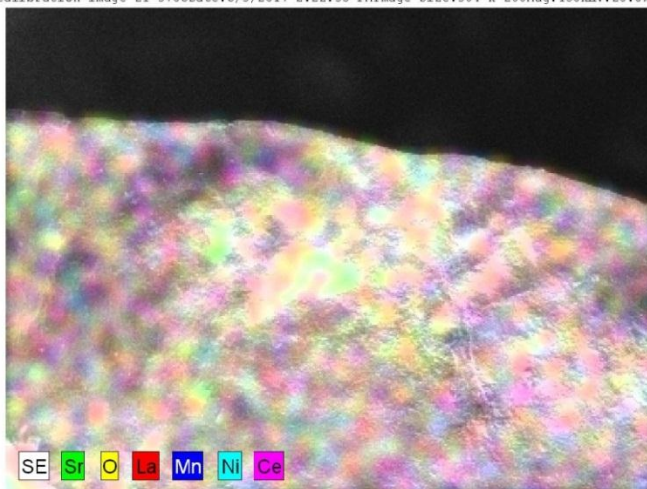


calibration image 4719 Date: 6/3/2017 2:19:27  
PM Image size: 512 x 384 Mag: 150x HV: 20.0kV



Map Date: 6/3/2017 2:22:34 PM HV: 20.0kV  
Pulse th.: 3.90kcps

calibration image 21 3706 Date: 6/3/2017 2:22:35 PM Image size: 384 x 288 Mag: 150x HV: 20.0kV



6/3/2017

2. Page

***“Halaman ini sengaja dikosongkan”***



## BIODATA PENULIS



Penulis dilahirkan di Pontianak 09 Maret 1994 dengan nama lengkap Lia Harmelia dan akrab dipanggil dengan “Lia”. Penulis merupakan anak kedua dari dua bersaudara oleh pasangan Sudharnoto dan Harlia Djuhardi. Pendidikan formal yang telah ditempuh oleh penulis, yaitu SD Muhammadiyah II Pontianak, SMP Negeri 03 Pontianak, dan SMA Negeri 01 Pontianak. Setelah lulus SMA, penulis

melanjutkan kuliah di Institut Teknologi Sepuluh Nopember di Departemen Kimia melalui Program Kemitraan dan Mandiri (PKM) pada tahun 2013 dan terdaftar dengan NRP. 01211340000110. Pada semester akhir perkuliahan, penulis mengambil Tugas Akhir di bidang minat Kimia Material dan Energi dibawah bimbingan Hamzah Fansuri M.Si, Ph.D. dan Wahyu Prasetyo Utomo M.Si. Selain bidang akademik penulis juga aktif di bidang non akademik seperti aktif tergabung dalam tim futsal putri Departemen Kimia dan Fakultas Matematika dan Ilmu Pengetahuan Alam (FMIPA), pernah aktif di bidang organisasi Dewan Perwakilan Mahasiswa FMIPA pada periode 2015-2016, serta aktif sebagai *Volunteer* pada kegiatan yang diselenggarakan oleh BEM ITS, yaitu tim kreatif ITS Mengajar *for* Indonesia (IFI) pada tahun 2014 dan tim acara ITS *Socio Gathering* pada tahun 2015. Penulis dapat dihubungi melalui email [lia.harme@gmail.com](mailto:lia.harme@gmail.com)